

INSTITUT FÜR ANGEWANDTE PHYSIK  
TECHNISCHE UNIVERSITÄT DARMSTADT



**Optische Messtechnik für umströmte Tropfen  
in einer neuen elektrodynamischen Falle**

Vom Fachbereich Physik  
der Technischen Universität Darmstadt  
zur Erlangung des Grades  
eines Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

genehmigte  
**Dissertation**

von  
**Dipl.-Phys. Christian Heinisch**  
aus Fulda

Darmstadt 2008  
D 17

Referent:	Prof. Dr. T. Tschudi
Korreferent:	Prof. Dr. W. Ellermeier
Tag der Einreichung:	07.10.2008
Tag der Prüfung:	10.11.2008

Meinen Eltern gewidmet





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>I</b>	<b>Elektrodynamische Falle mit neuer Geometrie</b>	<b>6</b>
<b>2</b>	<b>Elektrodynamische Falle</b>	<b>7</b>
2.1	Bekannte Geometrien und Neuentwicklung . . . . .	7
2.2	Stabilitätsbetrachtung . . . . .	13
2.2.1	Stabilitätsbereich . . . . .	13
2.2.2	Berechnung des elektrischen Feldes . . . . .	14
2.2.3	Vergleich mit alternativen Geometrien . . . . .	19
2.3	Vergleich mit anderen Methoden zur Fixierung von Tropfen . .	22
2.4	Zusammenfassung . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Experimentelle Techniken beim Einsatz der Falle</b>	<b>25</b>
3.1	Technik der Falle . . . . .	26
3.1.1	Tropfeninjektion . . . . .	26
3.1.2	Regelung der vertikalen Tropfenposition . . . . .	26
3.1.3	Gasströmung . . . . .	27
3.2	Optische Messtechniken für Tropfen . . . . .	30
3.2.1	Aufnahme von Strukturresonanzen . . . . .	30
3.2.2	Aufnahme des Fernfelds des Streulichts . . . . .	30
3.2.3	Abbildung des Tropfens und Aufnahme von Glanzpunkten . . . . .	32
3.2.4	Größenbestimmung von homogenen Kugeln . . . . .	32
3.2.5	Brechungsindexbestimmung zur Konzentrationsmessung	34
3.2.6	Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit als Funktion des Gasflusses . . . . .	39
3.2.7	Spektrale Messung von Raman-Streulicht . . . . .	41

<b>II</b>	<b>Anwendungen der Falle mit optischen Messtechniken</b>	<b>44</b>
<b>4</b>	<b>Lichtstreuung von Femtosekundenpulsen an Tropfen</b>	<b>45</b>
4.1	Strukturresonanzen in kugelförmigen Tropfen in Theorie und Experiment . . . . .	45
4.2	Unterdrückung von Strukturresonanzen durch Verwendung von Femtosekundenpulsen im Experiment . . . . .	48
4.3	Zusammenfassung . . . . .	50
<b>5</b>	<b>Lichtstreuung an dielektrischen Kugeln mit einem exzentrischen Einschluss</b>	<b>51</b>
5.1	Einführung . . . . .	52
5.2	Direkte Abbildung bei gleichzeitiger Laser- und Weißlichtbeleuchtung . . . . .	53
5.3	Beobachtung von Glanzpunkten . . . . .	54
5.4	Fernfeldaufnahmen in einem Winkelbereich von $120^\circ$ . . . . .	59
5.5	Zeitaufgelöste Vermessung des Tropfens anhand des Fernfelds der Lichtstreuung . . . . .	66
5.6	Zusammenfassung . . . . .	73
<b>6</b>	<b>Sherwood- und Nusselt-Zahl von Tropfen bei Reynolds-Zahlen um eins</b>	<b>74</b>
6.1	Modellierung des Stoff- und Wärmetransports . . . . .	75
6.2	Bekannte Untersuchungen der Sherwood-Zahl von Kugeln bei kleinen Reynolds-Zahlen . . . . .	78
6.3	Berechnung der Sherwood-Zahl aus experimentellen Daten . . . . .	83
6.4	Experimentelle Untersuchung des Stofftransports von Wassertropfen in Stickstoff . . . . .	85
6.5	Zusammenfassung . . . . .	95
<b>7</b>	<b>Temperaturen verdampfender Tropfen in Strömungen bei Reynolds-Zahlen um eins</b>	<b>97</b>
7.1	Temperaturmesstechniken für Einzeltropfen . . . . .	98
7.2	Messungen des Wärmetransports von Kugeln bei Reynolds-Zahlen um eins . . . . .	102
7.3	Experimentelle Untersuchung von Wassertropfen in Stickstoff . . . . .	103
7.3.1	Temperaturkalibrierung . . . . .	103
7.3.2	Messung der Tropfentemperatur bei verschiedenen Gasgeschwindigkeiten . . . . .	107
7.4	Zusammenfassung . . . . .	110

<b>8 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>111</b>
<b>A Verwendete Symbole</b>	<b>115</b>
<b>B Bekannte Untersuchungen zur Sherwood-Zahl von Kugeln bei kleinen Reynolds-Zahlen</b>	<b>118</b>
<b>C Materialeigenschaften</b>	<b>122</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Umströmte Tropfen in Form von Sprays und Aerosolen spielen eine wichtige Rolle in unserer Umwelt und in technischen Prozessen, zum Beispiel in unserer Atmosphäre, in Verbrennungsmotoren, in Sprühtrocknern oder bei der Anwendung von Pflanzenschutzmitteln. In diesen Bereichen sind zum einen detaillierte Kenntnisse über das Verhalten einzelner Tropfen von entscheidendem Vorteil, um Modelle zu verfeinern, zum anderen sind optische Messtechniken für Tropfen in Sprays zur Diagnose unabdingbar.

Zu beiden Punkten liefert die vorliegende Arbeit wichtige Beiträge, indem der Wärme- und Stofftransport von verdampfenden Wassertropfen in einer Stickstoffströmung präziser als bisher bestimmt wird, indem zum ersten Mal experimentell das Verschwinden von optischen Strukturresonanzen bei der Beleuchtung von Tropfen mit Femtosekundenpulsen nachgewiesen wird und indem neue Anwendungen optischer Messtechniken untersucht werden. Zu letzteren zählt eine Temperaturmessung, bei der zum ersten Mal die spontane Raman-Streuung auf einzelne Wassertropfen angewendet wird. Diese Temperaturmessung ist sogar unter allen Untersuchungen zum Einfluss der Strömung auf die Verdampfung von Einzeltropfen die erste, bei der Tropfentemperaturen berührungslos gemessen werden. Auch die Größenbestimmung von kugelförmigen Einschlüssen in Tropfen durch Auswertung des elastischen Streulichts stellt eine neue Anwendung optischer Messtechnik dar. Dabei wurden erstmalig einzelne Wassertropfen mit  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser und einem einzelnen Lufteinschluss beobachtet.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen können zum Beispiel zur Verbesserung von Klimamodellen und zu neuen optischen Diagnosemethoden für Verbrennungsmotoren beitragen, mit denen Dieselmotoren und direkteinspritzende Benzinmotoren optimiert werden. In diesem Bereich können schon kleine Effizienzsteigerungen aufgrund des riesigen Weltkraftstoffverbrauchs den Forschungs- und Entwicklungsaufwand rechtfertigen. Aber auch im Bereich

der Sprühtrocknung können die Ergebnisse meiner Arbeit zu verbesserten Modellrechnungen führen, die dabei helfen, Produkteigenschaften zu steuern oder die Produktqualität und den Energieaufwand zu optimieren. Unter den sprühgetrockneten Produkten findet man zum Beispiel lösliches Milch- und Kaffeepulver, Waschmittel und hochwertige Arzneimittel. Schließlich können die Resultate auch der Entwicklung präziserer Modelle für Sprays im Pflanzenschutz dienen.

In dieser Arbeit wurden Einzeltropfen untersucht, indem sie berührungslos in einer neu entwickelten elektrodynamischen Falle fixiert wurden. Dadurch sind die Messungen frei von Störungen durch Kontakte zwischen Tropfen und Wänden, die die Tropfenform und den Wärme- und Stofftransport beeinflussen. Ein Nachteil der ursprünglichen elektrodynamischen Falle [1] ist die starke Einschränkung des für die Untersuchung von Tropfen nötigen optischen Zugangs durch die Elektroden. Außerdem fehlt in jener Falle ein Zugang für eine Gasströmung, die für die umfassende Untersuchung des Stoff- und Wärmetransports unverzichtbar ist. Deshalb habe ich im Rahmen dieser Arbeit eine neue Elektrodengeometrie aus vier röhrenförmigen Elektroden entwickelt und hier erfolgreich in allen Experimenten eingesetzt. Sie bietet einen erweiterten optischen Zugang bei gleichzeitig hoher Tropfenstabilität und zudem einen Zugang für einen Gasstrom, der die Untersuchungen zur Abhängigkeit der Tropfenverdampfung von der Strömungsgeschwindigkeit ermöglicht. Somit liefert die vorliegende Arbeit nicht nur präzise Daten zur Verdampfung von umströmten Tropfen und zeigt neue Anwendungen optischer Messtechniken, sondern sie stellt mit der neuen elektrodynamischen Falle auch ein leistungsfähiges Werkzeug für weitere Tropfenuntersuchungen bereit.

Der erste Teil dieser Dissertation beschäftigt sich mit der neuen elektrodynamischen Falle und mit bekannten optischen Messtechniken, die damit erfolgreich kombiniert wurden und die im zweiten Teil weiter eingesetzt werden.

In Kapitel 2 wird die neue Elektrodengeometrie vorgestellt. Sie besteht aus vier röhrenförmigen Elektroden und bietet einen optischen Zugang von  $360^\circ$  horizontal und  $36^\circ$  vertikal. Durch die Innenelektroden kann ein Gasstrom geführt werden, was die Anwendungen in Kapitel 6 und 7 erst ermöglicht. Im Vergleich zu bisher bekannten Geometrien bietet die Falle größeren optischen Zugang oder höhere Tropfenstabilität bei vergleichbaren Abmessungen und Spannungen. Dies zeigen umfangreiche Berechnungen des elektrischen Felds in der neuen Falle mit Hilfe der Ersatzladungsmethode. Insbesondere wurde durch diese Berechnungen erfolgreich gezeigt, dass die Tropfenstabilität in der neuen Falle höher ist als bei einer Anordnung aus zwei oder vier Ringen mit vergleichbaren Abmessungen und elektrischen Spannungen. Au-

ßerdem wird die elektrodynamische Falle mit anderen bekannten Techniken zur Fixierung von Tropfen mit optischem, akustischem, aerodynamischem oder elektrostatischem Funktionsprinzip verglichen. Die elektrodynamische Falle bietet ihnen gegenüber den Vorteil, dass Tropfen auch ohne aktive Regelung einer Gleichspannung eingefangen werden können, dass kein akustisches Strömungsfeld die Messungen stört, dass die Strömungsgeschwindigkeit bei fester Tropfengröße variiert werden kann und dass die Falle unabhängig von den optischen Eigenschaften des Tropfens funktioniert.

Im Kapitel 3 werden zahlreiche experimentelle Techniken vorgestellt, die mit der Falle mit Erfolg eingesetzt wurden. Dazu gehört ein Regelkreis, der nach dem Einfangen des Tropfens verbleibende Schwingungen der Tropfenposition unterdrückt. Außerdem wird beschrieben, wie elektrisch geladene Tropfen erzeugt werden und wie eine Stickstoffströmung durch die Falle kontrolliert wird. Schwerpunkt dieses Kapitels ist der gelungene Einsatz optischer Messtechniken zur Bestimmung von Größen, Brechungsindizes, Konzentrationen und Dichten von Tropfen sowie zur Messung von Kräften und Gasgeschwindigkeiten. Der große optische Zugang der neuen Elektrodengeometrie ermöglicht, diese Techniken flexibel zu kombinieren.

Der zweite Teil der Dissertation beschäftigt sich mit vielfältigen Anwendungen der Falle und den dabei gewonnenen neuen Ergebnissen.

Kapitel 4 zeigt, wie mit Hilfe der neu entwickelten Falle zum ersten Mal experimentell nachgewiesen wurde, dass Strukturresonanzen in Tropfen beim Übergang von der Beleuchtung mit cw-Laserlicht zur Beleuchtung mit Femtosekundenpulsen verschwinden. Dadurch wird die insgesamt gestreute Lichtleistung eine monotone Funktion der Tropfengröße. Diese Messungen dienen der Entwicklung einer neuen optischen Messtechnik, bei der Tropfengrößen in einem Spray eindeutig aus einzelnen Aufnahmen von Intensitäten bestimmt werden können.

Kapitel 5 berichtet, wie erstmalig Wassertropfen mit  $50\,\mu\text{m}$  Durchmesser mit einem einzelnen Lufteinschluss gefangen wurden und wie zum ersten Mal mit Erfolg die Winkelabhängigkeit ihres Streulichts experimentell aufgenommen wurde. Damit wurde auch zum ersten Mal die Größen und der Abstand von Tropfen und Blase bestimmt. Diese Tropfen fallen in die Kategorie der dielektrischen Kugeln mit einem kugelförmigen exzentrischen Einschluss. Die Winkelabhängigkeit des Streulichts solcher Tropfen wurde bisher ausschließlich theoretisch untersucht [3]; die vorliegende Arbeit liefert dazu erstmals experimentelle Daten. Solche Tropfen treten möglicherweise auch in natürlichen Prozessen wie an der Meeresoberfläche auf, aber auch bei der Anwendung von gekapselten Indikatoren [4] in kleinen Tropfen tritt eine ähnliche Geometrie auf.

In Kapitel 6 wird vorgestellt, wie der Wärme- und Stofftransport um verdampfende Tropfen in einer Strömung bei Reynolds-Zahlen um eins experimentell präziser bestimmt werden als bisher. Dieser Bereich von Reynolds-Zahlen ist ein Übergangsbereich, in dem die Stokes'sche Näherung der schleichenden Strömung mit steigenden Reynolds-Zahlen ihre Gültigkeit verliert. Dieser Fall ist vor allem für Untersuchungen von Strömungsphänomenen in der Atmosphäre von Interesse. Die Reynolds-Zahl ist zum Beispiel eins bei einem frei fallenden Wassertropfen von  $80\,\mu\text{m}$  Durchmesser bei seiner Endgeschwindigkeit in Luft von  $5^\circ\text{C}$  und  $10^5\text{ Pa}$ . Für die Untersuchungen wurden hier Wassertropfen in Stickstoff bei Umgebungstemperaturen gemessen, damit liegt eine Schmidt-Zahl von 0,64 vor. Für den Stofftransport, der durch die Sherwood-Zahl charakterisiert wird, gibt es in diesem Bereich verschiedene analytische Näherungen [5, 6, 7] und numerische Berechnungen [8], die voneinander abweichen. Bisherige experimentelle Ergebnisse für die Sherwood-Zahl unter diesen Bedingungen [9, 10, 12, 13, 14] weichen ebenfalls voneinander ab oder sind mit deutlichen Messunsicherheiten verbunden. Die meisten [10, 13, 14] wurden im Gegensatz zur vorliegenden Arbeit nicht berührungslos durchgeführt. Meine Untersuchungen zeichnet aus, dass mehr als 700 einzelne Tropfen berührungslos untersucht wurden, was durch die neu entwickelte elektrodynamische Falle ermöglicht wurde. Ein weiteres hervorragendes Merkmal ist die Messunsicherheit der Sherwood-Zahl, die geringer ist als bei anderen Arbeiten. Die mit dieser Messung gewonnenen Daten können schließlich dazu beitragen, Modelle für Sprays und Aerosole in den zu Beginn genannten Anwendungen zu verbessern.

In Kapitel 7 werden zum ersten Mal Temperaturen von einzelnen Wassertropfen durch spontane Raman-Streuung gemessen. Dabei verdampfen Tropfen wie im Kapitel 6 in einer Stickstoff-Strömung bei Reynolds-Zahlen um eins. Von allen Untersuchungen zum Einfluss der Strömung auf die Verdampfung von Einzeltropfen ist sie die erste, bei der Tropfentemperaturen berührungslos gemessen wurden. Mit diesen Messungen wurde nachgewiesen, dass die im Kapitel 6 verwendeten Annahmen zur Temperaturberechnung im Rahmen der Temperaturmessunsicherheit gerechtfertigt sind. Neben der zeitlich gemittelten Temperatur wurden auch Tropfentemperaturen mit einer zeitlichen Auflösung von 0,3s gemessen. Die Temperaturmessung mit spontaner Raman-Streuung bietet den Vorteil, dass sie berührungslos ist und dass keine Farbstoffe bzw. Indikatoren zugegeben werden. Im Gegensatz zur Infrarotthermometrie wird hier die Temperatur im Tropfeninneren und nicht an der Oberfläche gemessen.

Als Ausblick wird schließlich am Beispiel von Algenzellen gezeigt, dass auch biologische Proben in der elektrodynamischen Falle berührungslos untersucht werden können.



Dieser Überblick zeigt, dass ich im Rahmen dieser Dissertation sowohl technische Problemstellungen wie die Entwicklung einer elektrodynamischen Falle und die Anwendung verschiedener optischer Messtechniken bearbeitet und gelöst habe als auch wissenschaftliche Fragestellungen wie zum Stofftransport von Tropfen in Strömungen oder zur Lichtstreuung an inhomogenen Tropfen. Die Ergebnisse dieser Arbeit können einen wichtigen Beitrag zu Innovationen für Industrie, Landwirtschaft und Umwelt leisten.

# Teil I

## Elektrodynamische Falle mit neuer Geometrie

# Kapitel 2

## Elektrodynamische Falle

*Die elektrodynamische Falle ist ein leistungsfähiges Werkzeug zur berührungslosen Fixierung von Tropfen. Die Einschränkung des optischen Zugangs durch die Elektroden in den bisher bekannten Geometrien kann im Experiment Schwierigkeiten bereiten. Deshalb wird in diesem Kapitel eine neue Elektrodengeometrie vorgestellt, die einen erweiterten optischen Zugang von  $360^\circ$  horizontal und  $36^\circ$  vertikal bei gleichzeitig hoher Tropfenstabilität bietet. Die neue Geometrie ist außerdem für die Führung eines Gasstroms geeignet und wurde bereits erfolgreich eingesetzt, wie die Kapitel 3, 4, 5, 6 und 7 zeigen.*

*In Abschnitt 2.1 wird zunächst das Funktionsprinzip elektrodynamischer Fallen erläutert. Die neu entwickelte Geometrie, die aus vier röhrenförmigen Elektroden besteht, wird mit bereits bekannten Elektrodengeometrien hinsichtlich des optischen Zugangs verglichen. Im Abschnitt 2.2 wird zunächst allgemein erläutert, in welchem Frequenz- und Spannungsbereich Tropfen stabil gefangen werden können. Anschließend wird anhand von Berechnungen des elektrischen Felds gezeigt, dass die Tropfenstabilität in der neuen Geometrie größer ist als in einer vergleichbaren Geometrie aus zwei oder vier Ringen bei gleichen Elektrodenpotentialen. Abschnitt 2.3 stellt heraus, warum die Methode der elektrodynamischen Falle im Vergleich zu anderen Techniken für die Experimente in dieser Arbeit am besten geeignet ist.*

### 2.1 Bekannte Geometrien und Neuentwicklung

Die elektrodynamische Falle ist auch unter Paulfalle, „Paul trap“, „electrodynamic balance (EDB)“ und „electrodynamic chamber“ bekannt. Die Paulfalle ist nach Wolfgang Paul benannt, der diese Falle für das Fangen von Ionen entwickelte und benutzte und 1953 als „ein neues Massenspektrometer oh-

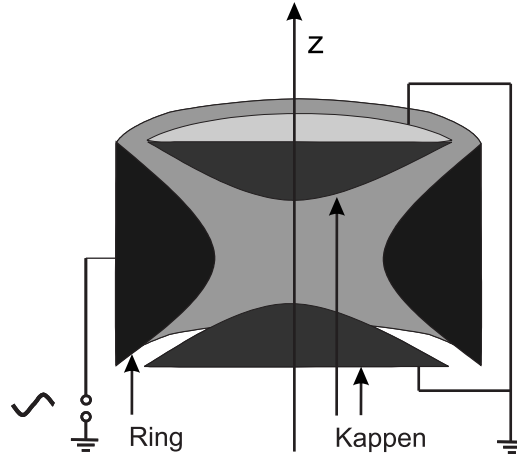


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der von Wolfgang Paul entwickelten Falle im Schnitt.

ne Magnetfeld“ vorstellte [1]. 1989 erhielt er den Physik-Nobelpreis für die Entwicklung der Technik der Ionenfalle. Die Falle besteht im Wesentlichen aus drei Elektroden wie in Abbildung 2.1 skizziert: eine Ringelektrode sowie je eine Kappenelektrode darüber und darunter. Zum Zentrum hin sind die Elektroden hyperbolisch geformt und zwischen dem Kappenelektrodenpaar und der Ringelektrode liegt eine Wechselspannung an. Diese Falle wurde von Wuerker et al. [15] zum ersten Mal für Partikel eingesetzt.

Diese Geometrie der Elektroden erzeugt das elektrische Potential

$$\varphi(r, \phi, z, t) = \frac{\varphi_0}{z_0^2} \sin(\omega t) \left( z^2 - \frac{r^2}{2} \right), \quad (2.1)$$

wobei  $r$ ,  $\phi$  und  $z$  Zylinderkoordinaten sind,  $t$  die Zeit ist und  $\omega$  die Kreisfrequenz, mit der sich das Potential periodisch ändert.  $\varphi_0/z_0^2$  ist eine Konstante, wobei  $\varphi_0$  das elektrische Potential an der Stelle  $z_0$  auf der  $z$ -Achse ist. Wie in Abbildung 2.2 gezeigt ist das elektrische Potential in allen Richtungen parabolförmig. Der Gradient des elektrischen Potentials im Zentrum ist Null und daher ist das Zentrum feldfrei. Das heißt, eine geladene Probe erfährt dort keine Kraft. Ohne Reibungskräfte sind die Bewegungen in beiden Richtungen unabhängig voneinander, deshalb genügt es für das Verständnis des Funktionsprinzips eine Richtung zu betrachten wie in Abbildung 2.3 dargestellt: Außerhalb des Zentrums, wohin die Probe zum Beispiel durch eine äußere Störung, durch die Gewichtskraft oder während der Injektion gelangen kann, wirkt an einem festen Punkt eine Kraft, die periodisch ihr Vorzeichen ändert. Ihre Amplitude ist umso stärker, je größer der Abstand zum Zentrum

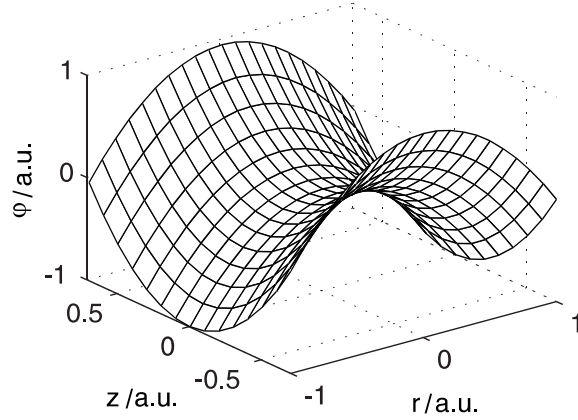


Abbildung 2.2: Sattelförmiges Potential nach Gleichung 2.1 in einer achsensymmetrischen Falle.

ist. Über eine Periode gemittelt wirkt auf eine Probe an diesem festen Punkt keine Kraft. Die Probe ist jedoch beweglich und führt deshalb außerhalb des Zentrums Schwingungen aus. Während einer halben Periode wird die Probe zum Zentrum hin beschleunigt (Abbildung 2.3, oben) und befindet sich, sofern die Parameter geeignet gewählt sind, in der darauf folgenden halben Periode näher am Zentrum (Abbildung 2.3, unten). Dort ist der Betrag der Feldstärke geringer und die Kraft, die über diese halbe Periode gemittelt nach außen wirkt, ist dort kleiner als in der vorigen halben Periode nach innen. Im Mittel über eine gesamte Periode wirkt also eine zum Fallenzentrum gerichtete Kraft, die unabhängig vom Vorzeichen der Probenladung ist. Diese mittlere Kraft lässt sich als Gradient des sogenannten Pseudopotentials

$$\varphi_{ps} \propto qE^2/\omega^2 \quad (2.2)$$

darstellen, wobei  $q$  die elektrische Ladung der Probe,  $E$  der Betrag der elektrischen Feldstärke und  $\omega$  die Kreisfrequenz des Felds ist. Eine exakte analytische Beschreibung der Bewegung im Vakuum liefern die Matthieu'schen Differentialgleichungen. Der Einfluss der Luftreibung ist in der Regel vorteilhaft für die Stabilität.

Die ursprüngliche Elektrodengeometrie, die bezüglich des elektrischen Felds und der Stabilität der Probe optimal ist, bietet allerdings nur sehr wenig Zugang für optische Messtechniken. Um diesen Nachteil zu beheben, werden heute auch verschiedene andere Geometrien eingesetzt. Naheliegender ist, den optischen Zugang in den gewünschten Richtungen durch Löcher in den Elektroden zu gewinnen, wie zum Beispiel in der von Leisner et al. [16]

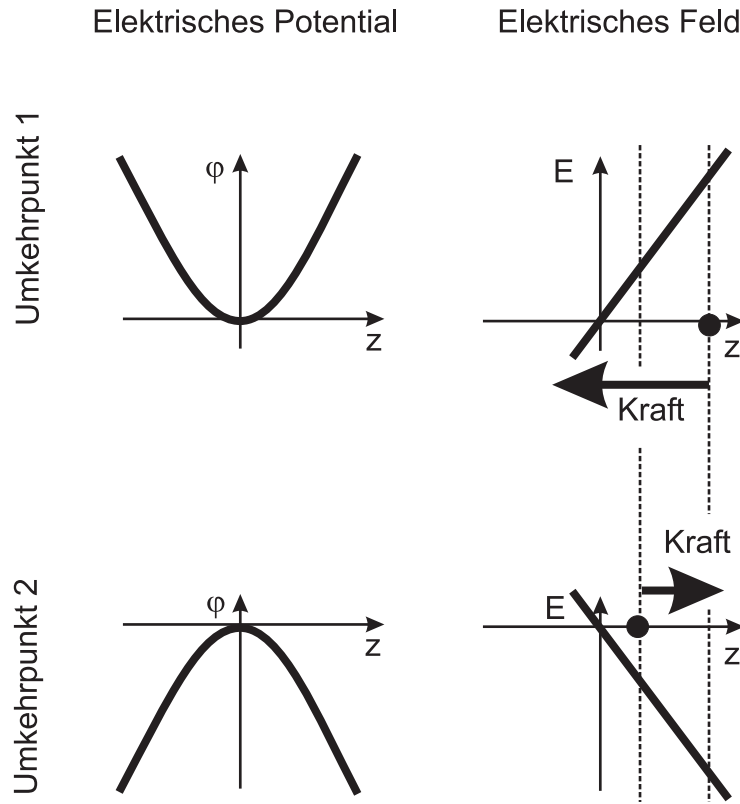


Abbildung 2.3: Erläuterung des Funktionsprinzips der elektrodynamischen Falle in einer Raumdimension. Das elektrische Potential hat Parabelform, wobei die Krümmung sich periodisch mit der Zeit ändert. Das elektrische Feld hängt linear vom Abstand zum Zentrum ab. Die beiden oberen und die beiden unteren Diagramme zeigen jeweils den gleichen Zeitpunkt.

eingesetzten Falle. In diesem Fall müssen jedoch schon bei der Herstellung der Elektroden die Beobachtungs- bzw. Beleuchtungsrichtungen festgelegt werden. Die von Masahide Tona [17] entwickelte Geometrie aus vier scheibenförmigen Elektroden in Abbildung 2.4 erlaubt einen 360°-Zugang. Damit bietet sie bereits mehr Flexibilität und erlaubt die Streulichtmessung der Probe gleichzeitig in beliebigen Richtungen in einer Ebene. Allerdings ist der optische Zugang dort vertikal auf 13,7° eingeschränkt. Den größten optischen Zugang zeigt eine Falle aus zwei Ringelektroden. Allerdings bietet sie unter den hier genannten Fällen bei vergleichbaren Bedingungen die geringste Probenstabilität. In Abschnitt 2.2.3 wird die Doppelring-Anordnung mit der hier neu vorgestellten Geometrie quantitativ verglichen. Eine Übersicht über weitere Geometrien geben Davis und Schweiger [18].

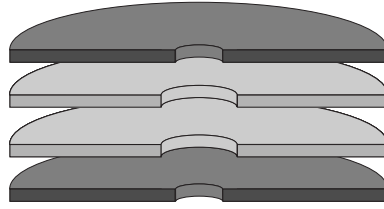


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der von Masahide Tona [17] entwickelten elektrodynamischen Falle im Schnitt. Sie besteht aus vier scheibenförmigen Elektroden.

Um gleichzeitig  $360^\circ$  optischen Zugang in einer Ebene zu haben mit einer numerischen Apertur von mehr als 0,31 und zusätzlich die Probe in einem Gasstrom untersuchen zu können, habe ich im Rahmen dieser Arbeit eine neue Elektrodengeometrie entwickelt. Sie besteht, wie in Abbildung 2.5 und 2.6 dargestellt, aus vier röhrenförmigen Elektroden: zwei Innenelektroden und zwei Außenelektroden. Durch die inneren Elektroden kann ein Gasstrom geführt werden. Diese Geometrie bietet den Vorteil, dass im Prinzip das gesamte Streulicht in einer Ebene aufgezeichnet werden kann, zum Beispiel scannend bei zeitlich unveränderlichen Proben. Mit der hyperbolischen Elektrodengeometrie oder mit einer Geometrie mit wenigen einzelnen Löchern wären die Aufnahmen in Abbildung 5.5 in Kapitel 5 nicht möglich gewesen. Durch eine größere Numerische Apertur kann außerdem eine höhere räumliche Auflösung bei Abbildungen erreicht werden; räumlich integrierende Messverfahren, zum Beispiel die Temperaturmessung von Tropfen durch Laser Induzierte Fluoreszenz oder Raman-Streuung (Abschnitt 3.2.7), können mit höherer Empfindlichkeit durchgeführt werden, indem ein größerer Anteil des Lichts von der Probe gesammelt wird. In Kombination mit einem Gasstrom, der durch die Innenelektroden geführt wird, können präzisere Messungen zum Wärme- und Stofftransport von Proben in strömenden Gasen durchgeführt werden (Kapitel 6 und 7).





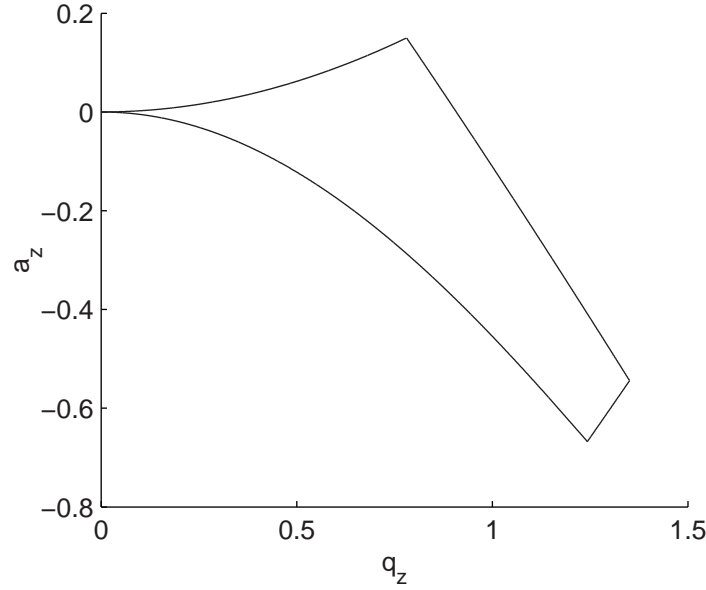


Abbildung 2.7: Bereich möglicher Betriebsparameter einer Falle mit idealem elektrischen Potential nach Gleichung 2.1, bei denen geladene Proben im Vakuum gefangen werden können. Der Parameter  $q_z$  hängt von der Stärke des elektrischen Wechselfelds ab (Gleichung 2.3), während  $a_z$  von der Stärke eines zusätzlichen Gleichfelds abhängt, das die gleiche Form wie das Wechselfeld hat (Gleichung 2.4). Beide Parameter hängen auch von der Ladung und der Masse des Tropfens und von der Frequenz des Wechselfelds ab. In dieser Arbeit ist  $a_z = 0$

## 2.2 Stabilitätsbetrachtung

### 2.2.1 Stabilitätsbereich

Die Bewegung eines geladenen Massenpunktes im Vakuum in einem elektrischen Potential nach Gleichung 2.1 kann mit Hilfe der Matthieu'schen Differentialgleichungen beschrieben werden. Aus ihren Lösungen geht hervor, dass die Bewegung nur in gewissen Bereichen des Parameters

$$q_z = 4 \frac{q_{el} \varphi_0}{m z_0^2 \omega^2} \quad (2.3)$$

stabil ist. Darin ist  $m$  die Masse und  $q_{el}$  die elektrische Ladung des Massenpunktes.  $\varphi_0$ ,  $z_0$  und  $\omega$  sind die Parameter des Potentials nach Gleichung 2.1. Der erste stabile Bereich ist  $0 < q_z < 0.908$ . Dieser Bereich kann verändert werden, wie in Abbildung 2.7 gezeigt, indem eine zusätzliche Gleichspannung  $2\varphi_{DC}$  zwischen den Kappenelektroden und der Ringelektrode – wie die

Wechselspannung – angelegt wird. Das entsprechende Potential erhält man aus Gleichung 2.1 durch Ersetzen von  $\varphi_0 \sin(\omega t)$  mit  $\varphi_{DC} + \varphi_0 \sin(\omega t)$ . Die Gleichspannung geht in den Parameter  $a_z$  wie folgt ein:

$$a_z = 8 \frac{q_{el} \varphi_{DC}}{m z_0^2 \omega^2} \quad (2.4)$$

Diese Gleichspannung  $2\varphi_{DC}$  ist nicht mit der Gleichspannung  $U_{DC}$  zu verwechseln, die zwischen oberer und unterer Kappenelektrode anliegt und zum Beispiel zur Kompensation der Gewichtskraft dient.

### 2.2.2 Berechnung des elektrischen Feldes

Um die Stabilität einer Probe in einer elektrodynamischen Falle vorherzusagen, sind Berechnungen des elektrischen Potentials und des elektrischen Feldes nötig. Da die Wellenlängen elektrodynamischer Wellen, die bei den hier verwendeten Frequenzen von unter 1 kHz entstehen können, wesentlich größer sind als die Abmessungen der Falle, kann das Feld zu jedem Zeitpunkt als elektrostatisches Feld berechnet werden. Dazu wurde die Ersatzladungsmethode verwendet. Das bedeutet, anstelle der Elektroden werden elektrische Elementarladungen innerhalb definiert, die an der Oberflächen der Elektroden näherungsweise das vorgegebene Potential erzeugen. Aufgrund der Achsensymmetrie werden hier Ringladungen als Elementarladungen verwendet. Die Position der Ringladungen wird anhand von Erfahrungswerten festgelegt und manuell optimiert, während die Stärke der Ladungen durch Lösen eines linearen Gleichungssystems bestimmt wird, nachdem das Potential an Kontrollpunkten auf der Oberfläche festgelegt wurde. Das Potential des Ringladungssystems in den Kontrollpunkten und außerhalb der Elektroden berechnet sich als lineare Überlagerung der Ringladungen.

Abbildung 2.8 zeigt das so berechnete elektrische Potential für einen Schnitt in der Elektrodengeometrie in Abbildung 2.5. Als Potential wurde 1 kV an der Oberfläche der Innenelektroden und 0 V an den Außenelektroden vorgegeben. Dargestellt sind Äquipotentiallinien und die Schnittfläche durch die Elektroden. Man erkennt, dass das Potential an den Elektroden nicht exakt nachgebildet werden konnte, wie bei der Ersatzladungsmethode zu erwarten. Der Einfluss dieser Abweichungen nimmt jedoch mit der Entfernung ab, so dass im Zentrum das Potential ausreichend genau berechnet wurde.

In Abbildung 2.9 ist der Betrag des entsprechenden elektrischen Feldes dargestellt. Die gemittelte Bewegung einer geladenen Probe in der Falle unter der Vernachlässigung von Reibung lässt sich durch das Pseudopotential nach Gleichung 2.2 beschreiben. Da dieses vom Quadrat  $|\vec{E}|^2$  der elektrischen

Feldstärke abhängt, stellen die Minima in Abbildung 2.9 Orte dar, an denen ein Tropfen fixiert werden kann. Im Zentrum ergibt sich ein Minimum, das in den Experimenten genutzt wird. Die Höhe des Pseudopotentials und damit das Maximum von  $|\vec{E}|^2$  um das Minimum kann als Maß für die Stabilität des Tropfens gesehen werden. Stabilität ist hier in dem Sinn gemeint, wieviel kinetische Energie ein Tropfen im Zentrum besitzen kann, ohne die Falle zu verlassen. In Abbildung 2.9 liegt der maximale Wert von  $|\vec{E}|$  um das Zentrum bei 289 kV/m auf der  $z$ -Achse bei  $z=3,4$  mm und 58 kV/m auf der  $r$ -Achse bei  $r=2,7$  mm. Für den Fall, dass wie in Abbildung 2.10 die Abstände der oberen Elektroden zu den unteren um 2 mm reduziert wurden, betragen die entsprechenden Werte 270 kV/m auf der  $z$ -Achse und 112 kV/m auf der  $r$ -Achse. Dies zeigt, dass durch Verschiebung der Elektroden in der hier vorgestellten Geometrie die Stabilität in  $z$ -Richtung zugunsten der  $r$ -Richtung reduziert und so flexibel an die experimentellen Anforderungen angepasst werden kann. In dieser Arbeit wurde die erste Variante gewählt, da sie größeren optischen Zugang bietet und der Gasstrom entlang der  $z$ -Achse verläuft und somit in dieser Richtung höhere Stabilität sinnvoll ist.

In diesem Abschnitt wurden erfolgreiche Berechnungen des elektrischen Potentials und des elektrischen Felds in der neuen Fallengeometrie vorgestellt, die zeigen, dass im Zentrum ein geladener Tropfen stabil gefangen werden kann.

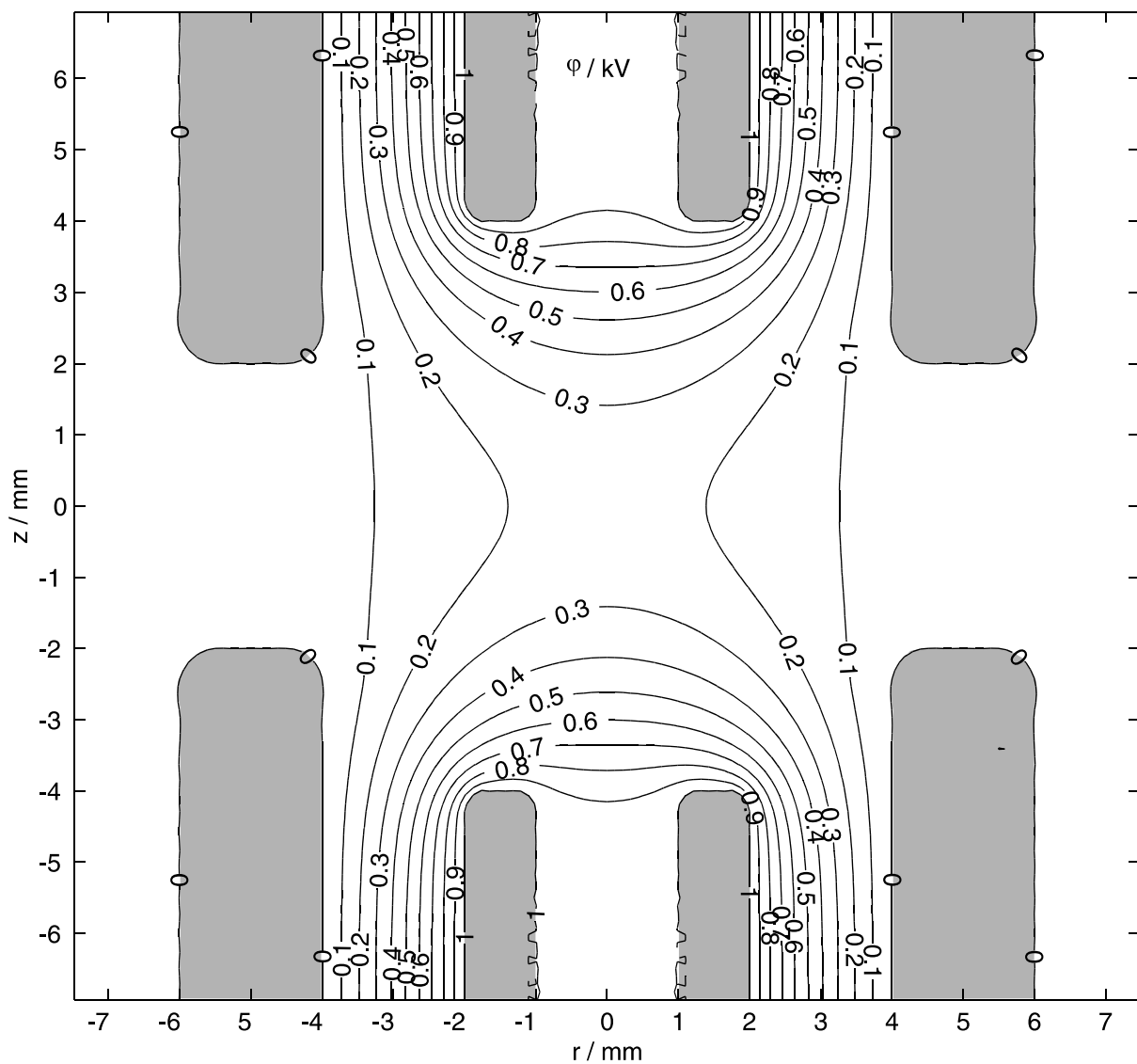


Abbildung 2.8: Mit der Ersatzladungsmethode berechnetes elektrisches Potential der neuen Elektrodengeometrie bei 1 kV Potential an den Innenelektroden und 0 kV an den Außenelektroden. Dargestellt sind Äquipotentiallinien und die Elektroden im Querschnitt.

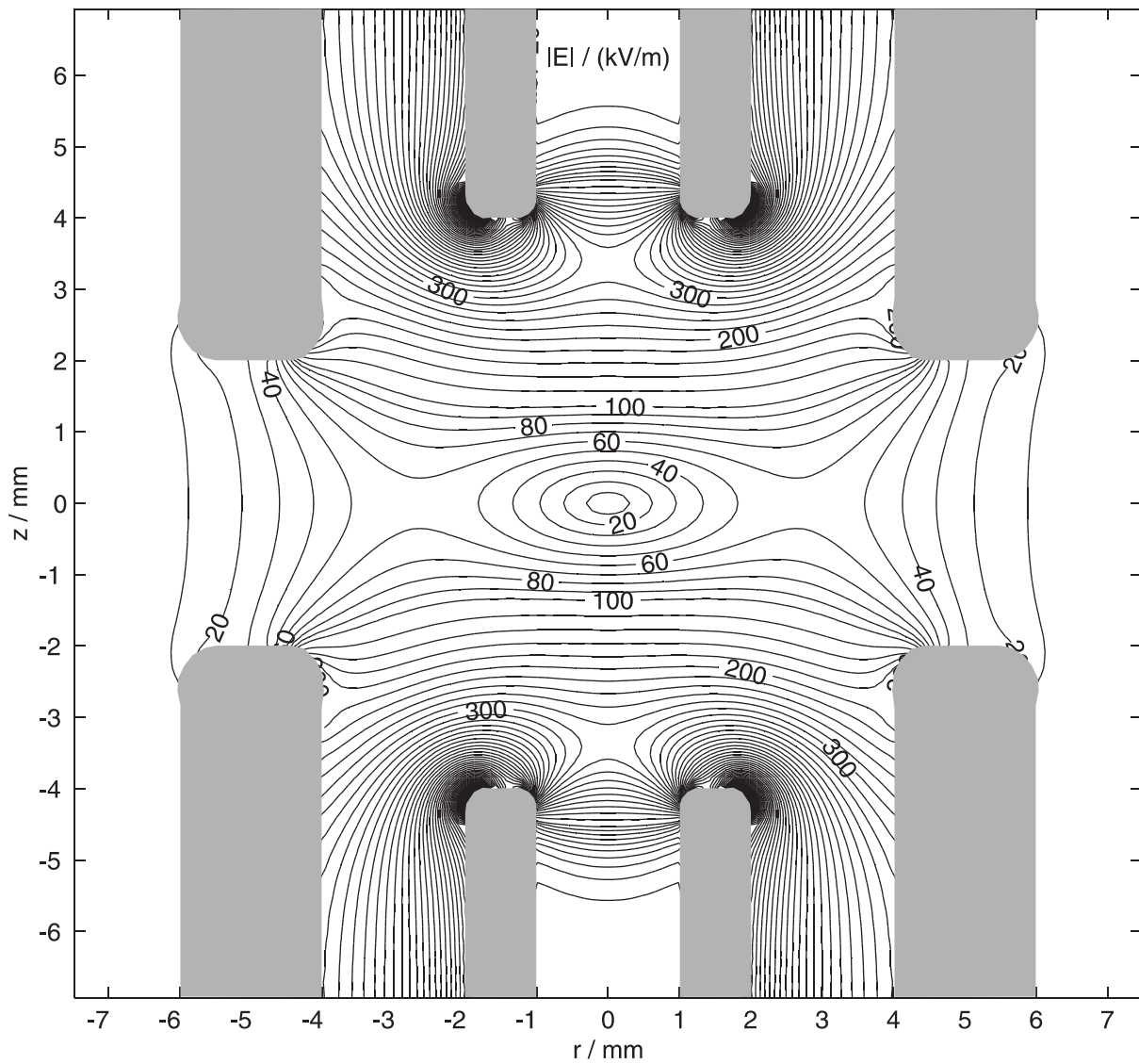


Abbildung 2.9: Betrag des elektrischen Felds im Schnitt durch die neue Elektrodengeometrie für das elektrische Potential in Abbildung 2.8. Dargestellt sind keine Feldlinien sondern Linien gleichen Feldstärkebetrags und die Elektroden im Schnitt.

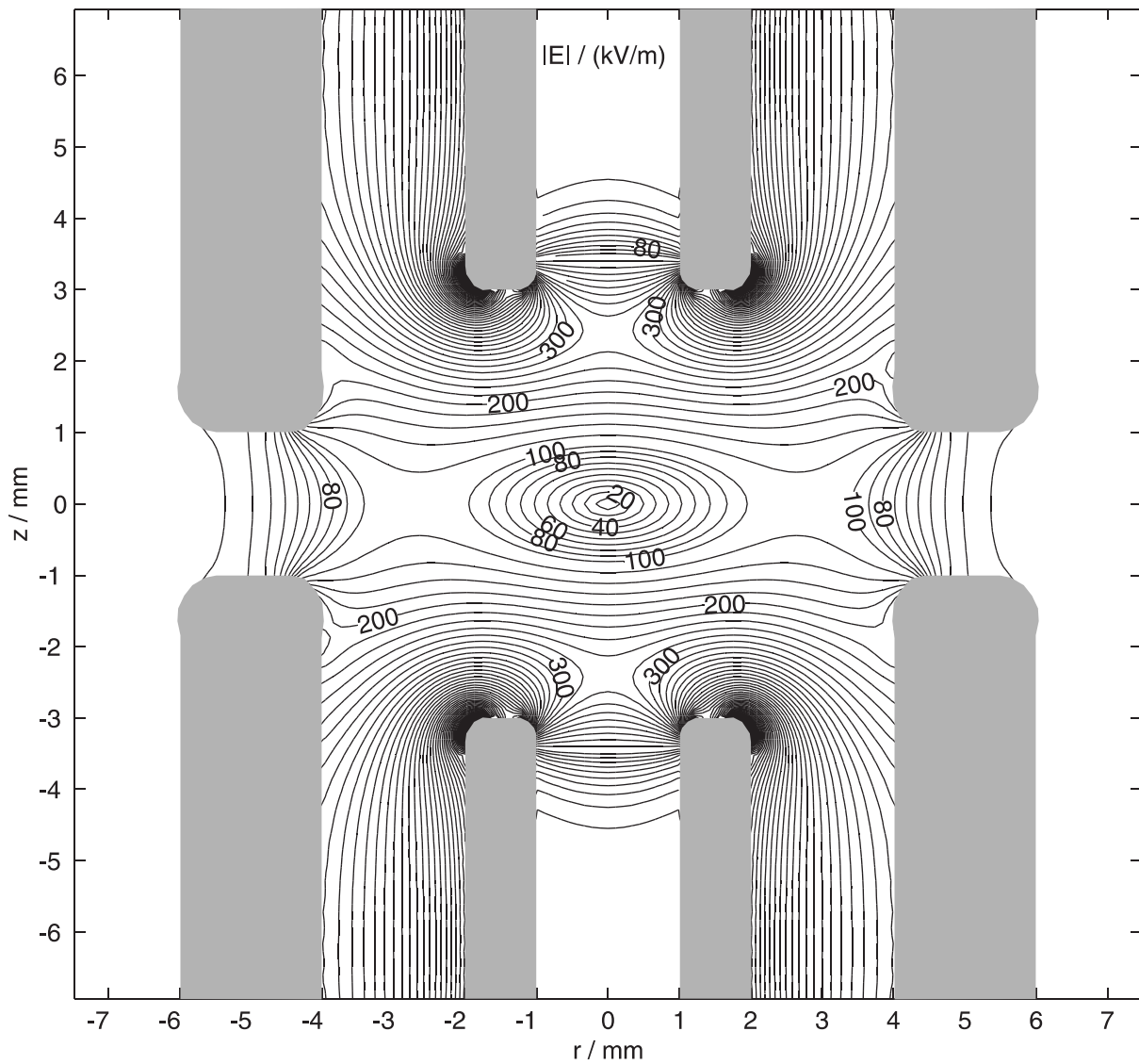


Abbildung 2.10: Betrag des elektrischen Felds. Im Vergleich zu Abbildung 2.9 wurde der Abstand zwischen den oberen und den unteren Elektroden um 2 mm reduziert.

### 2.2.3 Vergleich mit alternativen Geometrien

Den größten optischen Zugang bietet eine Fallengeometrie aus zwei Ringen. Abbildung 2.11 zeigt den Betrag der elektrischen Feldstärke im Querschnitt durch zwei Ringelektroden, die beide eine Potentialdifferenz von 1 kV gegenüber Punkten in unendlicher Entfernung haben. Der Durchmesser, die Dicke und der Abstand der Ringe und der Außenelektroden in Abbildung 2.5 sind gleich, so dass der zusammenhängende optisch zugängliche Winkelbereich von der Seite identisch ist. Während die maximalen Beträge der Feldstärke bei der Röhrengometrie in Abbildung 2.9 um das Zentrum auf den Achsen 289 kV/m und 58 kV/m sind, betragen sie bei der Ringgeometrie 60 kV/m bei  $z = 6,4$  mm und 3 kV/m bei  $r = 1,7$  mm sind damit deutlich geringer. Dieses erste Maximum auf der  $r$ -Achse ist in dieser Darstellung wegen der geringen Feldstärke nicht zu erkennen. Zwar gibt es ein stärkeres zweites Maximum von 76 kV bei  $r = 7,3$  mm, aber im Vergleich zur Röhrengometrie ist der Gradient der Feldstärke in horizontaler Richtung in der Nähe des Zentrums ist geringer. Dies beeinträchtigt die Stabilität hinsichtlich der Strecke, um die ein Tropfen bei kleinen Störungen – wie zum Beispiel in einer turbulenten Strömung – ausgelenkt wird. Die Stabilität in diesem Sinn kann durch den Koeffizienten  $c_1$  des quadratischen Terms  $z^2 - r^2/2$  einer Reihenentwicklung des elektrischen Potentials quantifiziert werden. Die Koeffizienten  $c_1 = 3,29 \cdot 10^4$  kV/m<sup>2</sup> für Abbildung 2.9 und  $c_1 = 0,29 \cdot 10^4$  kV/m<sup>2</sup> für Abbildung 2.11 sprechen deutlich für den Einsatz der Falle mit vier Röhren.

Abbildung 2.12 zeigt den Schnitt durch eine Anordnung mit zwei zusätzlichen Ringen mit Durchmesser, Dicke und Abstand der Innenelektroden der Falle mit vier Röhren. Hier liegen die kleinen Ringe auf einem Potential von 1 kV und die großen auf 0 kV. Dadurch wurden die maximalen Feldstärken um das Zentrum auf den Achsen auf 271 kV/m und 56 kV/m erhöht, sie liegend trotzdem noch unter denen der Falle mit vier Röhren.

In diesem Abschnitt wurde anhand von Berechnungen des elektrischen Felds erfolgreich gezeigt, dass die hier neu vorgestellte Elektrodengeometrie mit vier Röhren einer vergleichbaren Geometrie mit zwei oder vier Ringen in Bezug auf die Stabilität bei gleichen Elektrodenpotentialen überlegen ist. Daher wird die neue Geometrie für die Experimente in dieser Arbeit eingesetzt. Im nächsten Abschnitt stelle ich die Methode der elektrodynamischen Falle anderen Techniken zur Fixierung von Tropfen gegenüber.

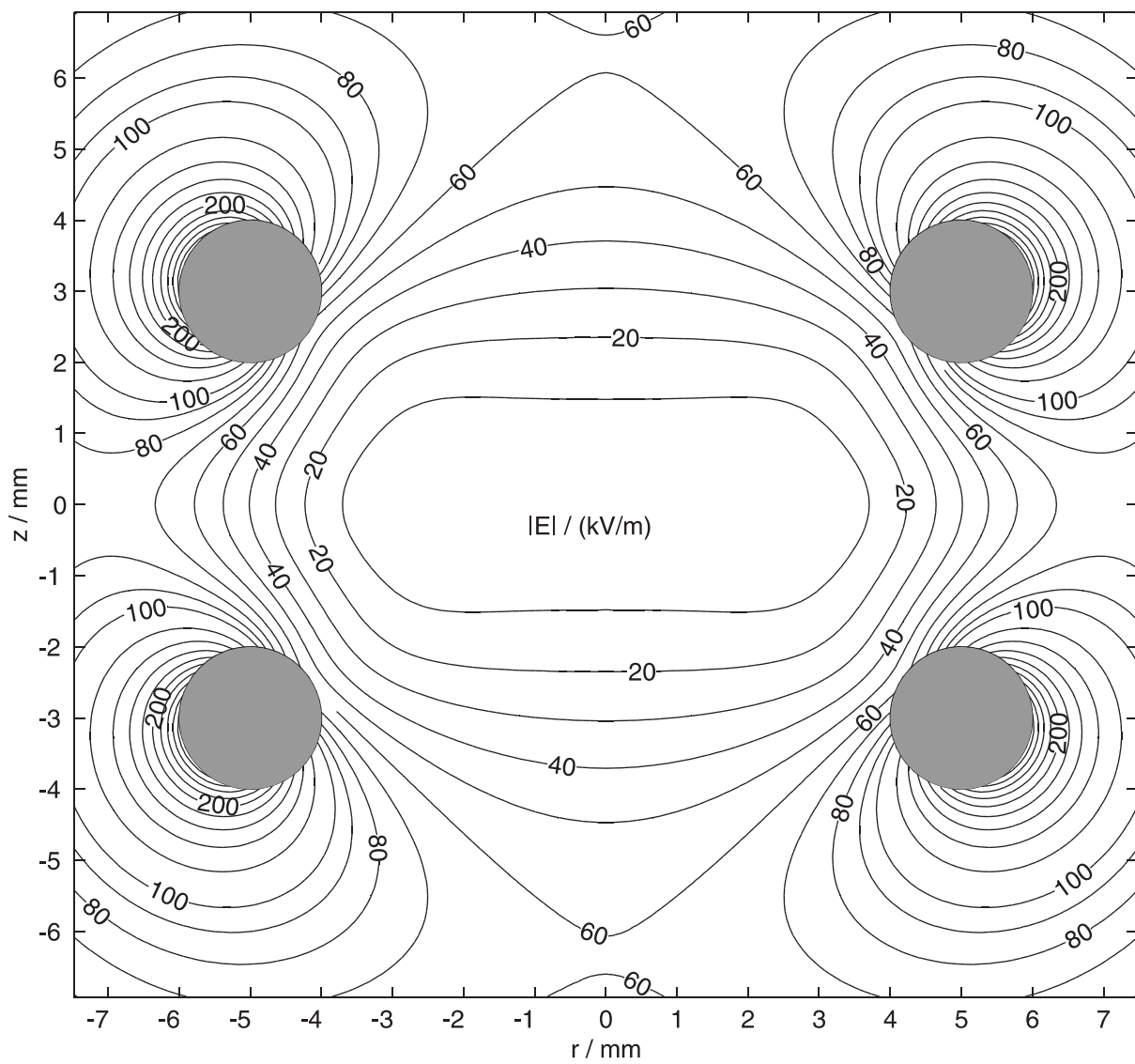


Abbildung 2.11: Betrag des elektrischen Felds im Schnitt durch eine Anordnung aus zwei Ringelektroden, die gegenüber unendlich weit entfernten Punkten ein Potential von 1 kV haben.



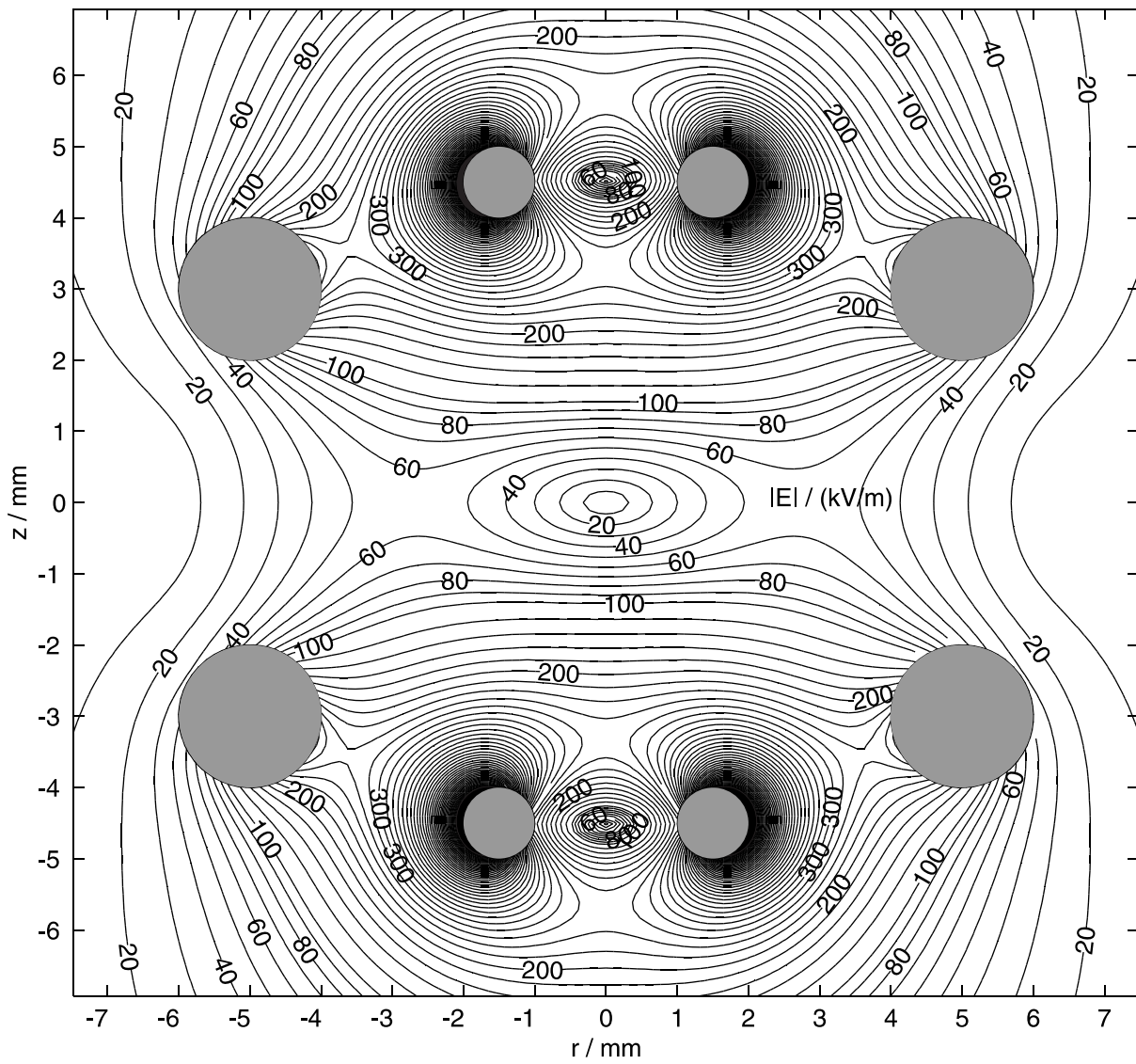


Abbildung 2.12: Betrag des elektrischen Felds im Schnitt durch eine Anordnung aus vier Ringelektroden, wenn die kleinen Ringe auf 1 kV elektrischem Potential liegen und die großen Ringe auf 0 V Potential.

## 2.3 Vergleich mit anderen Methoden zur Fixierung von Tropfen

### Optisch

Arthur Ashkin berichtete 1970 als erster über die Beschleunigung und das Einfangen mikroskopischer Tropfen und Partikel durch den Lichtdruck [19]. Er entwickelte die Technik der optischen Levitation und der optischen Fallen weiter, die seitdem in verschiedenen Bereichen angewendet wurden [20]. Das Prinzip beruht darauf, dass elektromagnetische Strahlung nicht nur Energie sondern auch Impuls überträgt, der bei Brechung oder Reflexion durch eine Kraft übertragen wird. Werden Proben in allen drei Raumrichtungen durch Lichtdruck fixiert, spricht man auch von einer optischen Pinzette, „optical tweezer“.

Die optische Pinzette eignet sich nur für Proben, die bei der Wellenlänge des verwendeten Lichts transparent sind. Wird Licht absorbiert, erhitzt sich die Probe und das ist in der Regel unerwünscht. Außerdem hängt die Stabilität durch die Reflexion und Brechung stark von der Form der Probe ab. Optische Pinzetten eignen sich nicht für Tropfen mit wesentlich größerem Durchmesser als  $60\text{ }\mu\text{m}$ , da für diese bereits eine Laserleistung von etwa  $4\text{ W}$  eingesetzt wird [21]. Da die Untersuchungen in dieser Arbeit nicht prinzipiell auf transparente Proben beschränkt sein sollen und auch Wassertropfen mit mehr als  $60\text{ }\mu\text{m}$  gefangen werden sollen, wurde hier von der optischen Levitation Abstand genommen.

### Akustisch

Durch eine stehende akustische Welle können Proben in Gasen oder Flüssigkeiten berührungslos fixiert werden. Akustische Levitatoren sind heute kommerziell erhältlich. Sie erzeugen mit einem piezoelektrischen Wandler eine Ultraschallwelle einer Frequenz um  $50\text{ kHz}$ . Das entspricht einer Wellenlänge in Luft unter Normalbedingungen von etwa  $7\text{ mm}$ . Durch einen Reflektor wird eine stehende Welle erzeugt, in deren Druckknoten durch den Schallstrahlungsdruck Proben berührungslos fixiert werden können [22].

Die akustische Levitation eignet sich im Vergleich zur optischen und elektrodynamischen Levitation besonders für große Proben: Seaver et al. [23] berichten über die akustische Levitation von Wassertropfen eines Durchmessers zwischen  $0,15\text{ mm}$  und  $3\text{ mm}$  bei einer Frequenz von  $33,5\text{ kHz}$ . Lee et al. [24] zeigten mit einer besonderen Reflektor- und Sendergeometrie und einer Frequenz bis zu  $163\text{ kHz}$  die Levitation von Wassertropfen zwischen  $10\text{ }\mu\text{m}$  und  $1000\text{ }\mu\text{m}$ . Unvermeidbar ist jedoch ein akustisch erzeugtes Strömungsfeld um

den Tropfen, das den Wärme- und Stofftransport beeinflusst. Da von mir unter anderem der Wärme- und Stofftransport untersucht werden soll und vor allem Tropfen mit einem Durchmesser unter  $100\text{ }\mu\text{m}$  verwendet werden, ist die akustische Levitation hier weniger geeignet als die elektrodynamische.

## **Aerodynamisch**

In einem turbulenzarmen Windkanal kann man durch exakte Regelung der Strömungsgeschwindigkeit die Gewichtskraft einer Probe kompensieren und die Probe in einem labilen Gleichgewicht in konstanter Höhe halten. Eine stabile Positionierung in drei Raumrichtungen lässt sich in einem expandierenden Freistrahle erreichen [25]. In beiden Fällen ist aber die Strömungsgeschwindigkeit bei jeder Probe vorgegeben und es können keine Proben ohne Strömung untersucht werden. Deshalb scheidet die ausschließliche Anwendung dieser Levitationstechnik in dieser Arbeit aus.

## **Elektrostatisch**

Im bekannten Millikan-Versuch [26], mit dem die elektrische Elementarladung bestimmt wurde, lassen sich elektrisch geladene Tropfen durch ein statisches elektrisches Feld in der Schwebe halten. Die Positionierung erfolgt in diesem Experiment aber nur in einer Dimension. Zusätzliche Elektroden ermöglichen die Positionierung in weiteren Raumrichtungen. In allen Fällen muss das elektrische Feld jedoch ausreichend schnell durch einen Regelkreis angepasst werden, um einen Tropfen in Ruhe zu halten. Da die elektrodynamische Falle die Probe auch ohne Regelkreis einfängt, wird sie der elektrostatischen hier vorgezogen.

## **2.4 Zusammenfassung**

In diesem Kapitel wurde eine neue Elektrodengeometrie für eine elektrodynamische Falle vorgestellt, die größeren optischen Zugang bietet als die Geometrie von Paul [1] und einen Zugang für einen Gasstrom bietet. Anhand von Berechnungen wurde gezeigt, dass die Stabilität eines Tropfens in der neuen Geometrie unter vergleichbaren Bedingungen größer ist als in einer Geometrie aus zwei oder vier Ringen. Diese neue Elektrodengeometrie ermöglicht die flexible Kombination verschiedener optischer Messtechniken, wie sie im folgenden Kapitel vorgestellt werden. Der Zugang für den Gasstrom ermöglicht die Messungen des Stoff- und Wärmetransports im Kapitel

6. Dabei ist auch die hohe Stabilität von Vorteil, um die Tropfen in dem Gasstrom zu fangen. Ohne einen entsprechend großen optischen Zugang wären auch die Messungen des Streulichts in einem  $120^\circ$ -Bereich in Kapitel 5 nicht möglich gewesen.

## Kapitel 3

# Experimentelle Techniken beim Einsatz der Falle

*In diesem Kapitel werden verschiedene bewährte experimentelle Techniken zur Untersuchung von Einzeltropfen vorgestellt, die hier mit der elektrodynamischen Falle erfolgreich kombiniert werden und diese so zu einem vielseitig einsetzbaren und leistungsfähigen Instrument machen. Dazu gehören Techniken zur berührungslosen Bestimmung von Tropfengrößen (Abschnitt 3.2.4), von Brechungsindizes, Konzentrationen und Dichten (3.2.5), von Kräften und Gasgeschwindigkeiten (3.2.6) sowie von Streuspektren (3.2.7). Die berührungslose Messung von Tropfentemperaturen wird separat im Kapitel 7 vorgestellt. Der erweiterte optische Zugang der neuen Elektrodengeometrie ermöglicht zudem, flexibel mehrere Techniken gleichzeitig anzuwenden.*

*Zuvor werden die für diese Messungen notwendigen Teile des Versuchsaufbaus vorgestellt: Abschnitt 3.1.1 beschreibt, wie geladene Tropfen erzeugt werden. Abschnitt 3.1.2 zeigt, wie Gewichtskräfte und Reibungskräfte durch eine zusätzliche Gleichspannung mit einem Regelkreis kompensiert werden, um permanente Tropfenoszillationen zu vermeiden. In Abschnitt 3.1.3 wird dargestellt, wie ein Stickstoff-Volumenstrom durch die Falle gemessen wird. Der Versuchsaufbau zur Untersuchung von Strukturresonanzen bzw. der Winkelabhängigkeit des Streulichts wird in den Abschnitten 3.2.1 und 3.2.2 vorgestellt.*

## 3.1 Technik der Falle

### 3.1.1 Tropfeninjektion

Zur Erzeugung von Einzeltropfen wurde in den Kapiteln 4, 5 und 6 wie von Wood et al. [27] ein Druckkopf eines Tintenstrahldruckers vom Typ „Hewlett Packard 51604A“ verwendet. Die Tinte wurde in den Experimenten durch Wasser ersetzt. Der Druckkopf arbeitet nach dem Bubblejet-Prinzip, bei dem durch Erzeugung einer Siedeblase beim Heizen die Flüssigkeit aus der Öffnung gedrückt wird. Zur Erzeugung jedes Tropfens wurde ein elektrischer Rechteckspannungspuls von 23 V mit einer Länge von etwa  $5\,\mu\text{s}$  an die entsprechenden Kontakte angelegt. Durch Variation der Pulsdauer kann die Austrittsgeschwindigkeit der Tropfen verändert werden. In Kapitel 7 wurde ein Mikrodosierkopf vom Typ „PICPIP“ der Firma „GeSiM“ eingesetzt, der piezoelektrisch arbeitet. Die Tropfen wurden seitlich in die Falle eingeschossen, denn beim Einschuss durch die obere Innenelektrode wurde im Experiment festgestellt, dass Tropfen bei zu geringen Austrittsgeschwindigkeiten oder abweichenden Austrittswinkeln dort die Innenwand treffen. Dieser Einschuss von oben ist unter höheren Anforderung an die zeitliche Stabilität des Tropfengenerators bezüglich der Tropfenerzeugung aber möglich.

Die Tropfen wurden durch ein elektrisches Gleichfeld aufgeladen, das durch eine Elektrode in einem Abstand von etwa 1 mm mit einer Spannung zwischen 300 V und 1200 V gegenüber dem Druckkopf bzw. dem Mikrodosierkopf erzeugt wurde.

In Verbindung mit der jeweiligen elektronischen Ansteuerung ist der Mikrodosierkopf dem Druckkopf bezüglich der zeitlichen Stabilität von Tropfengröße, Austrittsgeschwindigkeit und Austrittswinkel überlegen. Dagegen ist der verwendete Druckkopf leichter zu befüllen und er ist als Einwegartikel konzipiert und daher kostengünstig zu ersetzen. Mit beiden Geräten konnten jedoch Tropfen erzeugt und hinreichend aufgeladen werden, um sie in der neuen elektrodynamischen Falle zu fangen.

### 3.1.2 Regelung der vertikalen Tropfenposition

Wie in Abschnitt 2.1 erläutert, schwingt eine geladene Probe periodisch in der elektrodynamischen Falle, wenn eine permanente Kraft wie die Gewichtskraft oder die Reibungskraft in einer Strömung wirkt. Um Tropfen in Ruhe zu beobachten, wurde daher der Regelkreis in Abbildung 3.1 aufgebaut. Er besteht aus einer segmentierten Photodiode (4), auf die der Tropfen mit einer Linse (3) abgebildet wird, sowie einem Computer (5) mit einer Analog-Digital- und Digital-Analog-Wandlerkarte und einer Hochspannungsverstärkung (6).

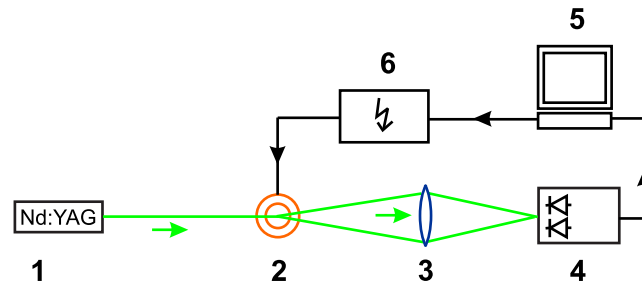


Abbildung 3.1: Versuchsaufbau zur Regelung der vertikalen Tropfenposition: Laser (1), Falle (2), Linse (3), segmentierte Photodiode (4), PC (5), Hochspannungsverstärkung (6)

Das Verhältnis der elektrischen Spannungen des oberen und unteren Photodiodensegments (4), über mehrere Wechselspannungsperioden gemittelt, ist ein Maß für die mittlere vertikale Tropfenposition. Sie dient im Computer (5) als Eingangssignal für einen digitalen PID-Regler. Das Ausgangssignal wird verstärkt (6) und über einen Widerstand an die obere Innenelektrode angelegt, die wiederum über einen Kondensator mit dem Wechselspannungsverstärker (6) verbunden ist.

Durch diese Regelung wurden Tropfen fester Größe erfolgreich auf weniger als  $1\text{ }\mu\text{m}$  in ihrer Position stabilisiert, so dass keine Bewegung mehr erkennbar war. Bei Tropfen, die innerhalb weniger Sekunden verdampfen, so dass die Gleichspannung fortlaufend angepasst werden muss, beträgt während der Messung die Auslenkung des Tropfens weniger als  $10\text{ }\mu\text{m}$ . Diese verbleibenden Schwingungen haben jedoch im Rahmen der Messunsicherheiten keinen merklichen Einfluss auf die Verdampfung, wie vergleichende Experimente mit größeren Auslenkungen zeigen.

### 3.1.3 Gasströmung

Die Elektroden der elektrodynamischen Falle sind in einer quaderförmigen Kammer eingebaut, die von der Umgebung gegen Gasaustausch weitgehend isoliert ist. Wird zum Test ein Innendruck von  $1012\text{ hPa}$  bei  $992\text{ hPa}$  Außendruck erzeugt, entweicht Luft mit einer Rate von etwa  $0,1\text{ ml/s}$ . Während der Messung sind Gesamtdruck innen und außen jedoch quasi identisch. Das Innenvolumen der Falle beträgt circa  $50\text{ ml}$  und ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Es ist seitlich von antireflexbeschichteten Glasfenstern und von oben und unten durch die Kupferelektroden und durch elektrisch isolierendes Material (PVC) begrenzt. Während der Messung an einem Tropfen strömt Stickstoff an der Stelle A1 in die Falle ein und bei A2 aus, während die Zugänge B1 und



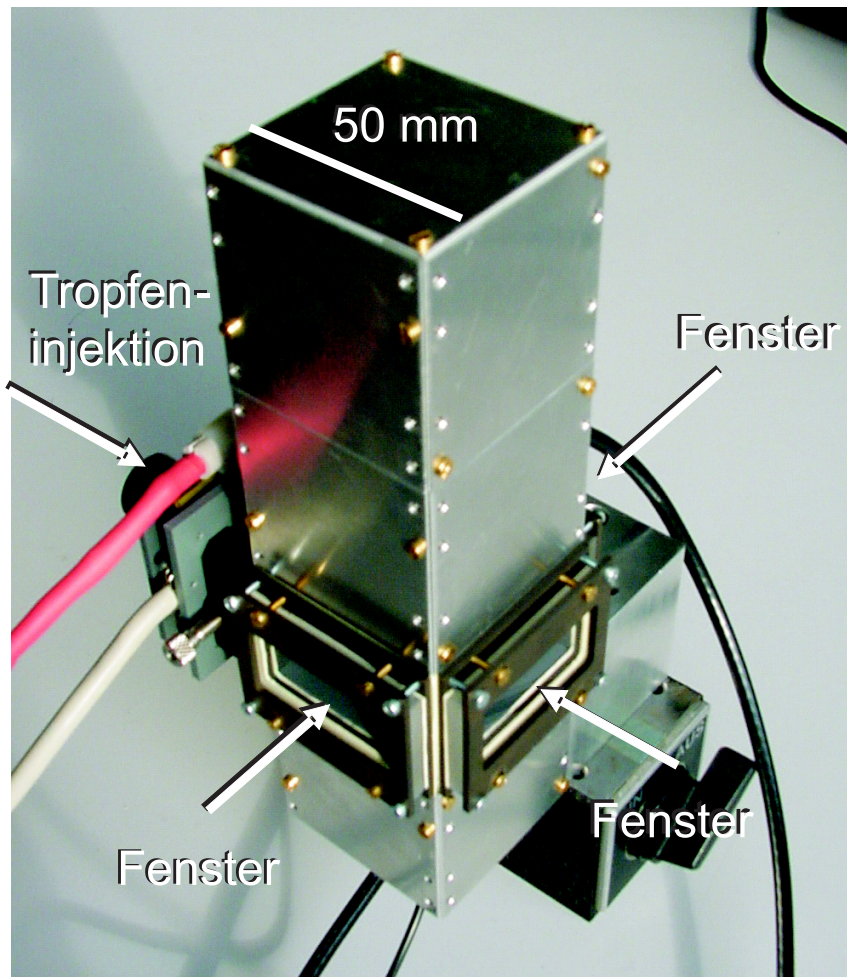


Abbildung 3.2: Foto des Fallengehäuses

B2 geschlossen sind. Das einströmende Gas stammt aus einer Gasflasche, die über einen Druckminderer, ein elektrisches Ventil und einen Schwebekörperdurchflussmesser mit A1 verbunden ist. Der Schwebekörperdurchflussmesser „SNAPIN 10A6142“ des Herstellers ABB misst Stickstoff-Volumenströme zwischen  $2,75 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$  und  $1,86 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$  (1,65 ml/min bis 112 ml/min) und wird manuell abgelesen. Das bei A2 ausströmende Gas wird über einen 10 m langen Schlauch in die Umgebung geleitet. Zwischen den Messungen wird die Falle mit Stickstoff gereinigt, der dann mit einem Volumenstrom von etwa 11/min bei B1 und mit 0,11/m bei A1 einströmt, während B2 und A2 geöffnet sind. Eine Ansicht der Außenelektroden durch die Fenster ist in Abbildung 3.4 zu sehen, Abbildung 3.2 zeigt das Gehäuse.



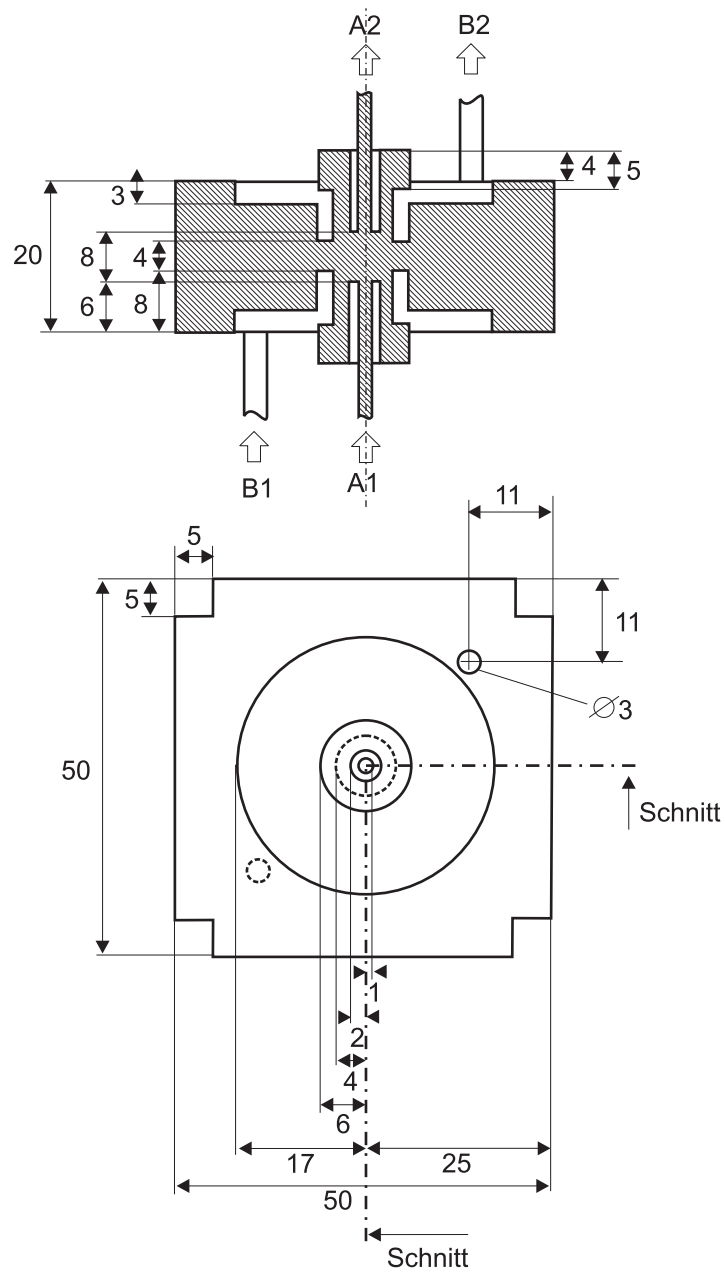


Abbildung 3.3: Das von Stickstoff ausgefüllte, als Körper dargestellte Volumen im Inneren der Falle. Oben: Im Querschnitt an der unten eingezeichneten Stelle. Unten: Aufsicht auf das gleiche Volumen. Alle Angaben sind in Millimetern gegeben. A1 und B1: Gaszuführung. A2 und B2: Gasauslass

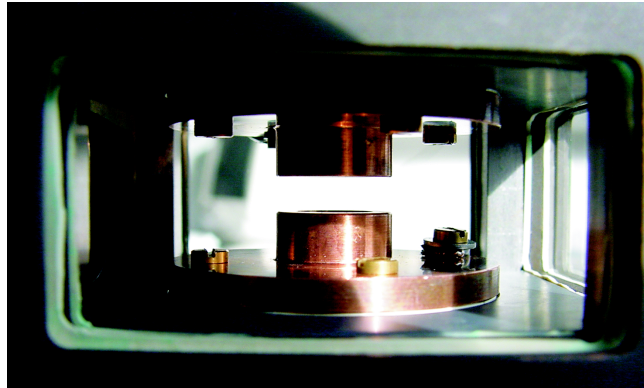


Abbildung 3.4: Blick durch ein Fenster des Fallengehäuses auf die Außen-  
elektroden.

## 3.2 Optische Messtechniken für Tropfen

### 3.2.1 Aufnahme von Strukturresonanzen

Im Kapitel 4 werden optische Strukturresonanzen in Tropfen mit dem Versuchsaufbau in Abbildung 3.5 untersucht. In diesem Fall wird der Tropfen mit einem Titan-Saphir-Laser (1) bei etwa 780 nm Wellenlänge beleuchtet. Im cw-Betrieb (continuous wave, Dauerstrich) liefert er 800 mW Leistung, während er im Pulsbetrieb Pulse mit 11 nJ Energie und 200 fs Dauer bei 75 MHz Wiederholfrequenz erzeugt. Durch Abbildung des Tropfens auf eine Photodiode (8) wird die Intensität des Lichts gemessen, das in einen Bereich von mehr als  $\pm 18^\circ$  um die Richtung  $\phi = 79^\circ$  und  $\theta = 0^\circ$  (Koordinatensystem in Abbildung 3.6) gestreut wird. Die Intensität wird mit einer Frequenz von 10 kHz abgetastet. Die Regelung der vertikalen Tropfenposition (3-6) arbeitet hier wie im Abschnitt 3.1.2 beschrieben. Dieser Versuchsaufbau ist für die Messungen in Kapitel 4 sehr gut geeignet, denn durch den großen optischen Zugang kann das Streulicht über den gewünschten Winkelbereich integriert werden. Durch die geeignete zeitliche Auflösung der Fotodiode wird einerseits über die Pulse integriert, während andererseits Strukturresonanzen aufgelöst werden.

### 3.2.2 Aufnahme des Fernfelds des Streulichts

Das Fernfeld des Streulichts wurde in Kapitel 5 und in den Abschnitten 3.2.4 und 3.2.5 wie in Abbildung 3.7 mit einer CCD-Kamera (10) in der Brennebene eines Linsenpaares (9) mit je 80 mm Brennweite gemessen. Die in dieser

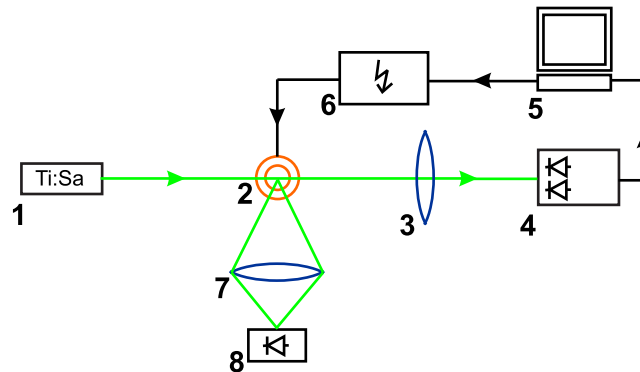


Abbildung 3.5: Versuchsaufbau zur Untersuchung der Strukturresonanzen in Kapitel 4: Titan-Saphir-Laser (1), Falle (2), Linse (3), segmentierte Photodiode (4), PC (5), Hochspannungsverstärkung (6), Linse (7), Photodiode (8).

Arbeit neu vorgestellte Elektrodengeometrie bietet einen optischen Zugang von  $360^\circ$  in der horizontalen Ebene. Um damit das Fernfeld des Streulichts von Tropfen flexibel zu messen, wurde sowohl die Falle als auch die Kamera (10) mit den Linsen (9) auf einem Drehtisch montiert. Damit können die Winkel der Falle (2) und der Kamera (9,10) separat auf  $0,01^\circ$  genau wiederholbar eingestellt werden. Die Kamera vom Typ „BASLER A631f“ hat maximal 1392 Pixel horizontale und 1040 Pixel vertikale Auflösung und nimmt bei voller Bildfläche und 12 bit Intensitäts-Auflösung maximal 11,3 Bilder pro Sekunde auf. Diese Bildrate lässt sich durch Einschränkung des Aufnahmebereichs bis auf 140 Bilder pro Sekunde erhöhen. Der Zusammenhang zwischen der Nummer eines Pixels und dem Streuwinkel wird kalibriert, indem bei reduzierter Leistung das ungestreute Laserlicht in Abhängigkeit von der Drehtischeinstellung gemessen wird. Durch diese Kalibrierung werden auch Linsenfehler berücksichtigt. Die volle Bildfläche entspricht mit der gewählten Linsenanordnung einem Winkelbereich von etwa  $12,8^\circ$  horizontal und  $9,4^\circ$  vertikal. Der Tropfen wird durch einen Nd:YAG-Laser mit einem Strahl von 532 nm Wellenlänge beleuchtet, dessen Durchmesser im Fallenzentrum 2 mm beträgt und dessen Polarisationsrichtung  $45^\circ$  zur Horizontalen beträgt. Gleichzeitig wird der Regelkreis aus Abschnitt 3.1.2 eingesetzt. Der Versuchsaufbau ist durch den Drehtisch sehr flexibel und sehr gut für die Größenbestimmung von Tropfen nach geometrischer Optik geeignet, da die zeitliche Auflösung ausreichend hoch ist und die erreichte Messunsicherheit nahe an dem mit dieser Methode Möglichen liegt, wie im Abschnitt 3.2.4 gezeigt. Zur Größenbestimmung von Tropfen wird dieser Versuchsaufbau auch in den Kapiteln 5, 6 und 7 eingesetzt.

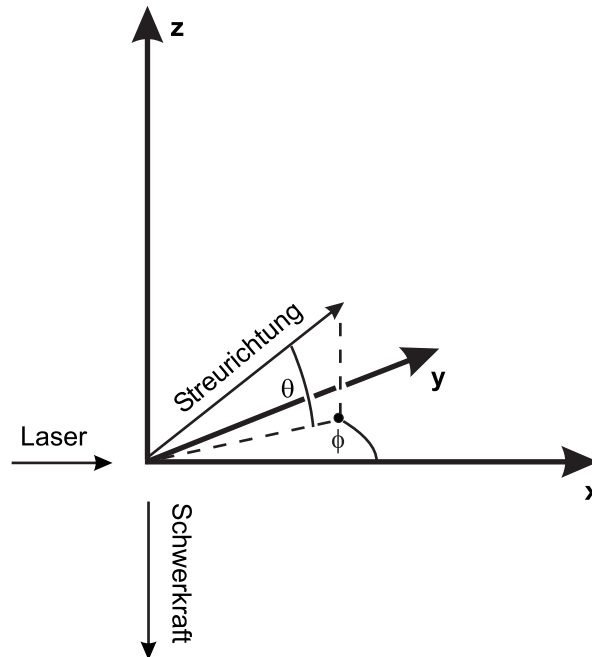


Abbildung 3.6: Lage der Winkel  $\phi$  und  $\theta$  bezüglich der Richtung des Laserstrahls und der Schwerkraft. Hier sind positive Winkel dargestellt.

### 3.2.3 Abbildung des Tropfens und Aufnahme von Glanzpunkten

Um die Stabilität des Tropfens zu kontrollieren, wurde der Tropfen wie in Abbildung 3.7 mit einer weiteren CCD-Kamera und einem Mikroskopobjektiv mit einem großen Arbeitsabstand von 33,5 mm aufgenommen. In der Regel war die Auslenkung der Tropfenposition während der Messungen in dieser Arbeit in strömendem Stickstoff kleiner als  $10\text{ }\mu\text{m}$ . Auf diese Weise wurden auch die Abbildungen 5.1 und 5.3 aufgenommen.

### 3.2.4 Größenbestimmung von homogenen Kugeln

Die Größenbestimmung von homogenen Tropfen im Kapitel 6 erfolgt durch Analyse des Streulichts, das wie in Abschnitt 3.2.2 aufgenommen wird. Für die Größenbestimmung wird in einem Winkelbereich gemessen, in dem das an der Tropfenoberfläche reflektierte Licht und das zweifach gebrochene Licht dominieren und ein Interferenzmuster ergeben. Diese Methode hat ihren Ursprung in den Messungen von König et al. [28], die damit die Tropfengrößen in einer monodispersen Tropfenkette vermessen haben. Der Abstand zwischen

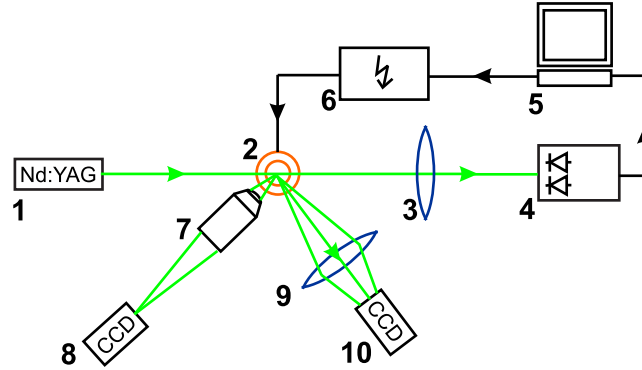


Abbildung 3.7: Versuchsaufbau zur direkten Beobachtung von Tropfen und zur Aufnahme des winkelabhängigen Streulichts: Neodym-YAG-Laser (1), Falle (2), Linse (3), segmentierte Photodiode (4), PC (5), Hochspannungsverstärkung (6), Mikroskopobjektiv (7), CCD-Kamera (8), Linse (9), CCD-Kamera (10).

zwei benachbarten Maxima lässt sich mit Hilfe folgender Formel berechnen, die von Glantschnig und Chen [39] in den Näherungen der geometrischen Optik hergeleitet wurde:

$$\Delta\phi \approx \frac{2\pi}{X} \left( \cos \frac{\phi}{2} + n \sin \frac{\phi}{2} / \sqrt{1 + n^2 - 2n \cos \frac{\phi}{2}} \right)^{-1}, \quad (3.1)$$

wobei  $\Delta\phi$  der Winkel zwischen benachbarten Maxima oder benachbarten Minima,  $X = 2\pi R/\lambda$  der Größenparameter,  $R$  der Tropfenradius,  $\lambda$  die Wellenlänge,  $n$  der Brechungsindex des Tropfens und  $\phi$  der mittlere absolute Winkel der Maxima oder Minima ist.

Im Kapitel 6 wurde zur Größenbestimmung von homogenen Tropfen das Streulicht bei Winkeln  $37,4^\circ < \phi < 50,2^\circ$  (siehe Abbildung 3.6), wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, aufgenommen. Im Abschnitt 3.2.5 und in den Kapiteln 5 und 7 werden teilweise abweichende Winkelbereiche verwendet. Zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses wurde über 20 Pixelreihen gemittelt, was einem Winkel von  $-0,1^\circ < \theta < +0,1^\circ$  entspricht. Abbildung 3.8 zeigt eine typische Aufnahme von einem verdampfenden Wassertropfen mit einer Belichtungszeit von 1 ms. Um den Winkel  $\Delta\phi$  zu bestimmen, wurde über die Abstände benachbarter Minima gemittelt, nachdem die Kurve durch Faltung mit einer Gaußkurve geglättet wurde. Daraus ergibt sich in diesem Beispiel nach der obigen Formel ein Tropfendurchmesser von  $2R = 47,3 \mu\text{m}$ . Nimmt man mit der Kamera in regelmäßigen Zeitabständen Streubilder auf, erhält man den Tropfendurchmesser als Funktion der Zeit wie in Abbildung

3.9. Die Punkte stellen die experimentellen Daten dar, die Linie zeigt mit angepaßten Parametern das  $d^2$ -Gesetz

$$d = \sqrt{d_0^2 + \beta_d(t - t_0)}, \quad (3.2)$$

wobei  $d$  und  $d_0$  die Tropfendurchmesser zum Zeitpunkt  $t$  bzw.  $t_0$  sind und  $\beta_d$  ein anzupassender Parameter für die Verdunstungsrate. Die Abweichungen entstehen hauptsächlich durch die Auswertung mit geometrischer Optik nach Gleichung 3.1. Um dies zu veranschaulichen, wurde in Abbildung 3.11 der Winkel zwischen Minima im Streifenmuster (Streifenperiode) als Funktion des Tropfendurchmessers aufgetragen. Die Punkte wurden nach der Mie-Theorie numerisch ermittelt, während die Linie nach Gleichung 3.1 von Glantschnig und Chen berechnet wurde. Bei gegebener Streifenperiode ergibt sich damit eine Mehrdeutigkeit für den Tropfendurchmesser, die sich in einer Messunsicherheit von etwa  $\pm 0,4 \mu\text{m}$  widerspiegelt. Zu den Abweichungen können höhere Streuordnungen und Strukturresonanzen beitragen. Damit bestätigt sich, dass die Oszillationen in Abbildung 3.9 durch die Auswertung entstehen. Es scheint naheliegend, daher den Durchmesser direkt aus dem Vergleich der Intensitätsverteilungen im Streubild nach der Mie-Theorie und im Experiment zu ermitteln. Dies ist jedoch für die vorliegenden Messungen an verdampfenden Tropfen bei Belichtungszeiten von 1 ms nicht geeignet, weil sich in diesem Zeitraum die Intensitäten im Streubild vor allem durch Strukturresonanzen stark ändern. Diese Änderung ist in Abbildung 3.10 zu erkennen, die als Beispiel für Tropfendurchmesser von  $47,29 \mu\text{m}$ ,  $47,30 \mu\text{m}$  und  $47,31 \mu\text{m}$  nach der Mie-Theorie berechnet wurden. Die Berechnungen für die Abbildungen 3.11 und 3.10 wurden mit Hilfe der Software „FLMT“ von H. E. Albrecht, N. Damaschke und H. Bech durchgeführt.

Durch die Messunsicherheit von  $\pm 0,005^\circ$  für die Streifenperiode  $\Delta\phi$ , die durch den Winkel pro Pixel gegeben ist, entsteht eine weitere Messunsicherheit von  $\pm 0,3 \mu\text{m}$  für den Tropfendurchmesser. Die Messung des Winkels  $\phi$  trägt dagegen zur Unsicherheit nur mit wenigen Nanometern bei. Insgesamt wird daher eine Messunsicherheit von  $\pm 0,5 \mu\text{m}$  für die Tropfengröße angegeben, die somit sehr nahe an der Messunsicherheit liegt, die mit dieser Methode überhaupt erreicht werden kann.

### 3.2.5 Brechungsindexbestimmung zur Konzentrationsmessung

In diesem Abschnitt wird beschrieben, wie mit Hilfe der Regenbogenmesstechnik die Konzentration und damit die Dichte eines Glycerol-Wasser-Ge-

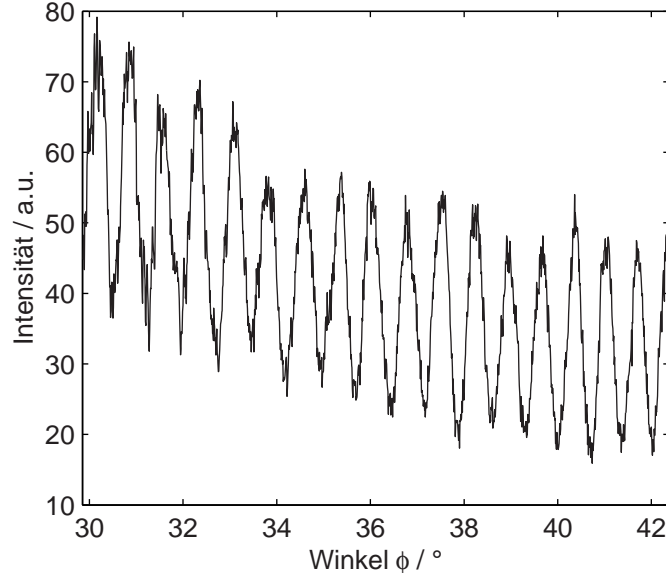


Abbildung 3.8: Experimentell aufgenommene Winkelabhängigkeit des Streulichts eines Wassertropfens von  $47,3\,\mu\text{m}$  Durchmesser in einem Laserstrahl von  $532\,\text{nm}$  Wellenlänge.

mischs in einem Tropfen bestimmt wird. Diese Messung wird im Abschnitt 3.2.6 zur Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit im Fallenzentrum benötigt.

Die Konzentration des Glycerol-Wasser-Gemischs wird dazu aus dem Brechungsindex berechnet. Um den Brechungsindex zu bestimmen, wurde zusätzlich zur Streulichtmessung für die Größenbestimmung auch das Licht im Bereich des ersten Regenbogens zwischen  $\phi = 149^\circ$  und  $\phi = 158^\circ$  aufgenommen. Dazu wurde eine zusätzliche Kamera vom Typ „SONY CCD260sw“ und ein zusätzliches Linsenpaar in ähnlicher Weise wie im Abschnitt 3.2.2 eingesetzt. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Anhand der Intensitätsverteilung im Bereich  $90^\circ < \phi < 170^\circ$  wurde das Maximum bei  $153,2^\circ \pm 0,5^\circ$  als das stärkste und damit als das Hauptmaximum des ersten Regenbogens identifiziert. Bei  $\phi = 157^\circ$  liegt das erste Nebenmaximum des Regenbogens („supernumerary bow“). Diese Struktur entsteht durch Interferenz zweier Strahlen 2. Ordnung, die parallel auf den Tropfen treffen und ihn parallel verlassen. Beide Maxima sind von einer Wellenstruktur (ripple structure) überlagert, die durch die zusätzliche Interferenz mit dem direkt reflektierten Licht (Strahlen 0. Ordnung) entstehen [29].

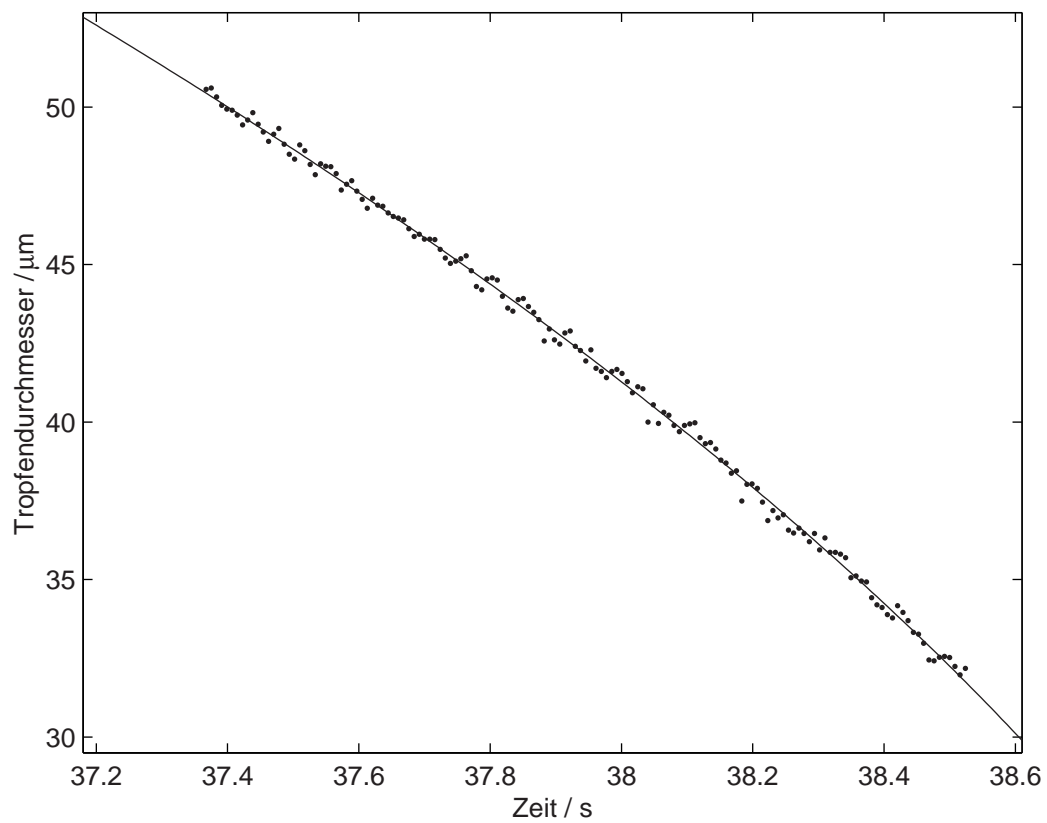


Abbildung 3.9: Experimentell bestimmter Durchmesser eines verdampfenden Wassertropfens in Stickstoff als Funktion der Zeit (Punkte). Daran angepasste Wurzelfunktion nach Gleichung 3.2 (Linie)



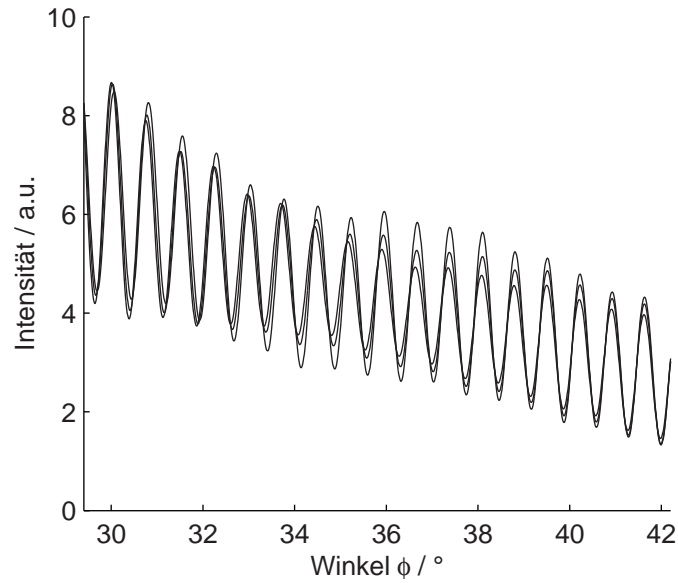


Abbildung 3.10: Theoretisch berechnetes Streulicht von kugelförmigen Wassertropfen (Brechungsindex 1.333) mit  $47,29 \mu\text{m}$ ,  $47,30 \mu\text{m}$  und  $47,31 \mu\text{m}$  Durchmesser. Polarisationsrichtung des Lasers  $\theta = 45^\circ, \phi = -90^\circ$  (Koordinatensystem siehe Abbildung 3.6). Wellenlänge 532 nm.

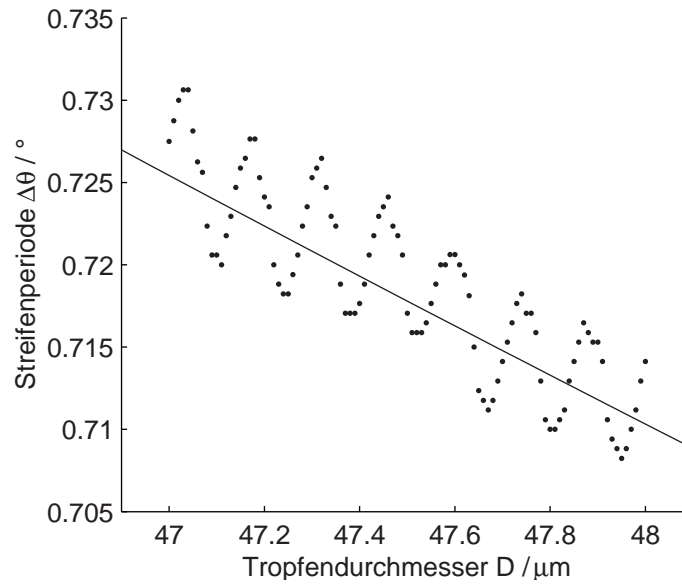


Abbildung 3.11: Punkte: Mittlere Streifenperiode des wie in Abbildung 3.10 berechneten Streubilds für verschiedene Tropfendurchmesser. Linie: Streifenperiode berechnet nach Gleichung 3.1.

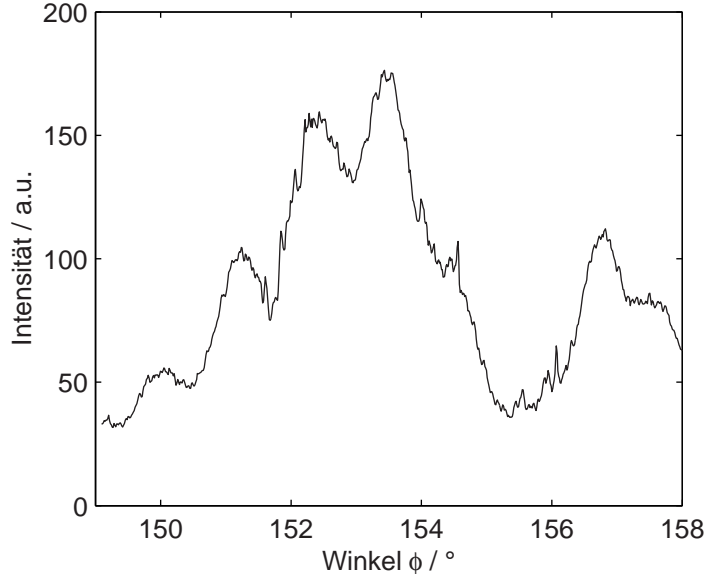


Abbildung 3.12: Experimentell an einem Wassertropfen aufgenommene Streulichtintensität im Bereich des ersten Regenbogens.

Zur Bestimmung des Brechungsindex wird wie von Wilms und Weigand [21] das Hauptmaximum des ersten Regenbogens mit Hilfe der Airy-Theorie ausgewertet:

$$\phi_{Airy} = \phi_{geom} + \frac{1.0873}{\sqrt{(n^2 - 1)/(p^2 - 1)}} \left[ \lambda^2 \frac{\sqrt{1 - (n^2 - 1)/(p^2 - 1)}}{64R^2} \right]^{1/3}, \quad (3.3)$$

$$\phi_{geom} = 2 \left\{ p \arccos \left( \frac{1}{n} \sqrt{1 - \frac{n^2 - 1}{p^2 - 1}} \right) - \arcsin \sqrt{\frac{n^2 - 1}{p^2 - 1}} \right\}, \quad (3.4)$$

wobei  $\phi_{geom}$  der Regenbogenwinkel nach geometrischer Optik,  $n$  der Brechungsindex des Tropfens,  $p = 2$  für den ersten Regenbogen,  $\lambda$  die Wellenlänge und  $R$  der Radius des Tropfens ist [29]. Im Gegensatz zu Wilms und Weigand wurden in der vorliegenden Arbeit die Messwerte jedoch nicht durch eine empirische Funktion korrigiert, die aus vergleichenden Berechnungen mit der Lorenz-Mie-Theorie gewonnen wurde. Der Regenbogenwinkel wurde in diesem Abschnitt direkt aus Abbildung 3.12 abgelesen. Die erreichte Messunsicherheit des Brechungsindex von  $\pm 0,005$  ist für die Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit hier völlig ausreichend.

Anhand der Interpolation von Tabellenwerten wurde schließlich die Glycerol-Konzentration und die Dichte des Tropfens erfolgreich bestimmt.

### 3.2.6 Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit als Funktion des Gasflusses

Da im Experiment der Volumenstrom direkt mit einem Durchflussmesser bestimmt wird, aber die Gasgeschwindigkeit in der Nähe des Fallenzentrums für die Tropfenverdampfung relevant ist, wird in diesem Abschnitt eine Kalibrierung zwischen diesen beiden Größen durchgeführt. Die hier eingesetzte Methode wurde bereits in ähnlicher Weise von Zhang und Davis [30] benutzt. Sie besteht darin, aus der Widerstandskraft einer Kugel in der Strömung die Gasgeschwindigkeit zu berechnen. Die Widerstandskraft wird dazu aus der Gleichspannung  $U_{DC}(Q)$  bei einem Volumenstrom  $Q$  des Gases berechnet, die nötig ist, um die Kugel in das Fallenzentrum zu bringen. Die Gleichspannung  $U_{DC}(Q)$  wird automatisiert durch den in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen Regelkreis eingestellt. Dass die Kugel sich im Fallenzentrum befindet, erkennt man daran, dass die Schwingungen der Kugel durch das Wechselfeld verschwinden. Wenn die elektrische Ladung des Tropfens erhalten bleibt und die entsprechende Gleichspannung  $U_{DC,0}$  in ruhendem Gas gemessen wird, ist diese Methode unabhängig von der Geometrie der Falle und die Widerstandskraft kann nach der folgenden Gleichung berechnet werden:

$$F_{drag}(Q) = U_{DC}(Q) m_0 g / U_{DC0} - m_Q g, \quad (3.5)$$

wobei  $m_Q$  und  $m_0$  die Masse der Kugel zum Zeitpunkt der Bestimmung von  $U_{DC}$  bzw.  $U_{DC0}$  ist. Die Fallbeschleunigung beträgt  $g = 9,81 \text{ m/s}^2$ .

Zhang und Davis [30] verwenden Tropfen aus Hexadecan und Methyloleat als Kugel. Da zum Zeitpunkt der Messung kein mit diesen Stoffen kompatibler Einzeltropfengenerator zur Verfügung stand, wurden in der vorliegenden Arbeit Tropfen aus einem Glycerol-Wasser-Gemisch von etwa  $45 \mu\text{m}$  Durchmesser verwendet. Um die Masse  $m_Q$  und  $m_0$  zu bestimmen wurden gleichzeitig der Tropfendurchmesser  $d$ , der Brechungsindex  $n$  des Tropfens und damit die Dichte  $\rho$  des Tropfens wie in Abschnitt 3.2.4 und 3.2.5 bestimmt. Da sich der Durchmesser des Tropfens innerhalb von Minuten nur wenige Mikrometer ändert, kann man eine vollständige Durchmischung von Wasser und Glycerol und damit eine homogene Brechungsindexverteilung im Tropfen annehmen.

Während Zhang und Davis [30] die Näherung von Oseen [31] für den Zusammenhang zwischen Widerstandskraft und Geschwindigkeit verwenden, wird hier die Näherung von Proudman und Pearson [32] verwendet, die weitere Terme einer Reihenentwicklung berücksichtigt:

$$F_{drag} = -6\pi R\eta v \left( 1 + \frac{3}{8} Re^* + \frac{9}{40} Re^{*2} \ln Re^* \right), \quad (3.6)$$

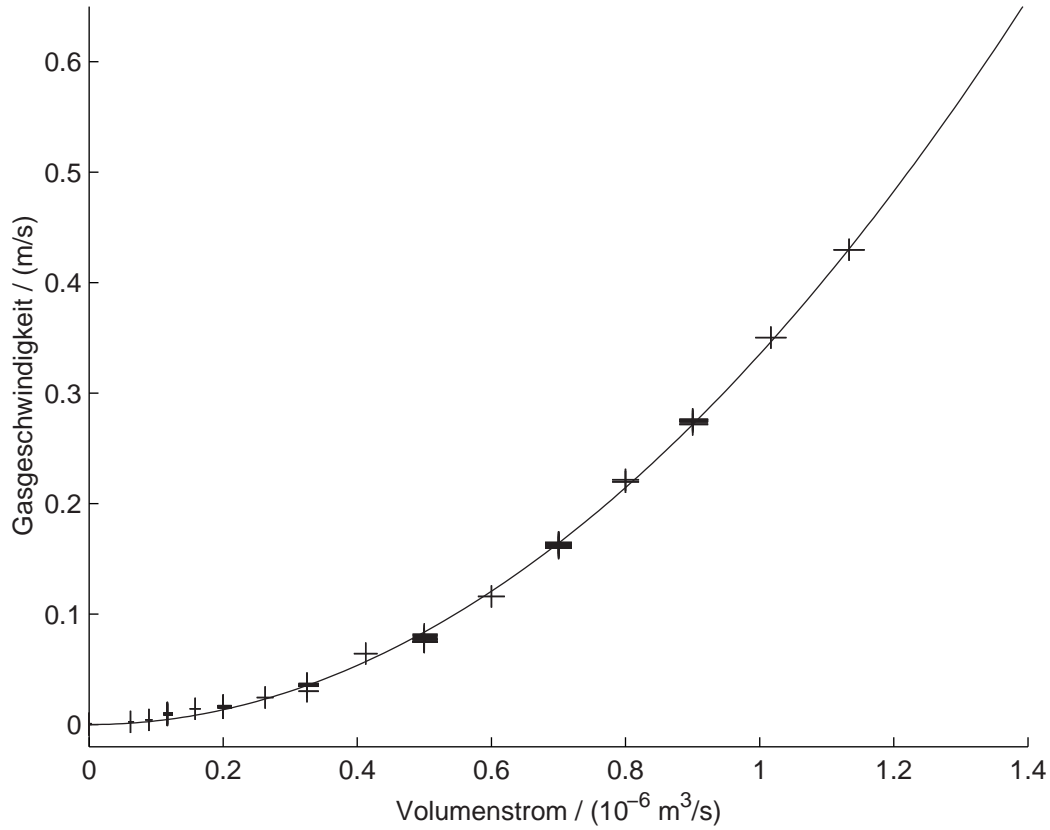


Abbildung 3.13: Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit im Fallenzentrum durch den Volumenstrom. Kreuze: experimentelle Daten, wobei die Länge der Striche die Messunsicherheit zeigt. Linie: angepasste Parabel wie bei einer laminaren Rohrströmung.

wobei  $F_{drag}$  die Widerstandskraft,  $R$  der Kugelradius,  $\eta$  die dynamische Viskosität des Gases,  $v$  die Geschwindigkeit der ungestörten Strömung im Fallenzentrum,  $Re^* = Rv\rho/\eta$  die Reynolds-Zahl bezüglich des Kugelradius  $R$  und  $\rho$  die Dichte des Gases ist. Für den hier typischen Fall  $R = 25 \mu\text{m}$ ,  $\eta = 1,82 \cdot 10^{-5} \text{ Pa s}$ ,  $v = 0,4 \text{ m/s}$  und  $\rho = 1,19 \text{ kg/m}^3$  liefert Gleichung 3.6 eine um 3% niedrigere Kraft. Die ermittelte Kalibrierkurve für Stickstoff ist in Abbildung 3.13 dargestellt.

Nimmt man  $\pm 0,5^\circ$  als Messunsicherheit für den Regenbogenwinkel,  $\pm 0,2 \text{ V}$  für die Gleichspannung  $U_{DC}$  und  $\pm 0,01^\circ$  für die Streifenperiode an, erhält man eine Messunsicherheit von etwa  $0,01 \text{ m/s}$ . Diese ist zusammen mit dem Ablesefehler des Durchflussmessers in Abbildung 3.13 als Fehlerbalken eingetragen.

Mit der Annahme einer Geschwindigkeitsverteilung nach Schlichting [33] in einem Freistrahle und einer Hagen-Poiseuille-Strömung innerhalb der zylindrischen Innenelektrode ist eine Geschwindigkeit im Fallenzentrum

$$v = \frac{Q^2 \rho}{2\pi^2 \eta r_0^2 z_0} \quad (3.7)$$

zu erwarten, wobei  $Q$  der Volumenstrom,  $\eta$  die dynamische Viskosität des Gases,  $\rho$  die Dichte des Gases,  $r_0$  der Innenradius der Innenelektrode ist und  $z_0$  der Abstand zwischen Innenelektrode und Fallenzentrum ist. Wie auch bei Zhang und Davis [30] sind die experimentellen Geschwindigkeiten niedriger als nach Gleichung 3.7. Dies ist dadurch zu erklären, dass eigentlich kein Freistrahle vorliegt sondern das Gas durch die obere Innenelektrode entweicht. Die Kurve in Abbildung 3.13 zeigt die Geschwindigkeit nach Gleichung 3.7 mit  $r_0 = 1 \text{ mm}$  und  $z_0 = 10 \text{ mm}$ , wobei  $z_0$  an die Messdaten angepasst wurde, wohingegen  $z_0 = 4 \text{ mm}$  der Elektrodengeometrie entspricht. Die quadratische Abhängigkeit ist bei den Messwerten sehr gut erfüllt. Die Reynolds-Zahl bezüglich des Innendurchmessers der Innenelektrode beträgt etwa  $Re=65$  bei einer maximalen Geschwindigkeit von  $0,5 \text{ m/s}$  von Stickstoff bei den gegebenen Bedingungen und liegt damit weit unter der Grenze von  $Re = 2000$ , bis zu der Rohrströmungen laminar bleiben.

Somit wurde eine gegenüber Zhang und Davis [30] in der Auswertung verfeinerte Methoden angewendet und eine Geschwindigkeitskalibrierung mit einer Messunsicherheit von  $\pm 0,01 \text{ m/s}$  erfolgreich in der Falle durchgeführt.

### 3.2.7 Spektrale Messung von Raman-Streulicht

Für die Messungen in Kapitel 7 wurde als Versuchsaufbau die elektrodynamische Falle zusammen mit der Regelung der vertikalen Tropfenposition wie in Abbildung 3.1 verwendet. Als Beleuchtung für die Positionsregelung wurde jedoch ein Diodenlaser mit etwa  $450 \text{ nm}$  Wellenlänge, einem Strahldurchmesser von etwa  $4 \text{ mm}$  und einer Leistung von ca.  $10 \text{ mW}$  verwendet.

Für die Temperaturmessung anhand spontaner Raman-Streuung wurde der Grundaufbau in Abbildung 3.1 durch die in Abbildung 3.14 gezeigten Elemente erweitert: Ein in die Falle (1) injizierter und gefangener Tropfen wird durch einen cw-Laser (2) beleuchtet, der Licht einer Wellenlänge von  $488 \text{ nm}$  mit  $25 \text{ mW}$  Ausgangsleistung und einer linearen Polarisierung senkrecht zur dargestellten Ebene liefert. Dieser Laserstrahl mit einem Durchmesser zwischen  $0,5 \text{ mm}$  und  $1 \text{ mm}$  wird mit einer Linse (3) mit  $75 \text{ mm}$  Brennweite auf den Tropfen fokussiert, um eine möglichst hohe Intensität für die Raman-Streuung zu erreichen. Das Streulicht wird in einem möglichst großen Raum-

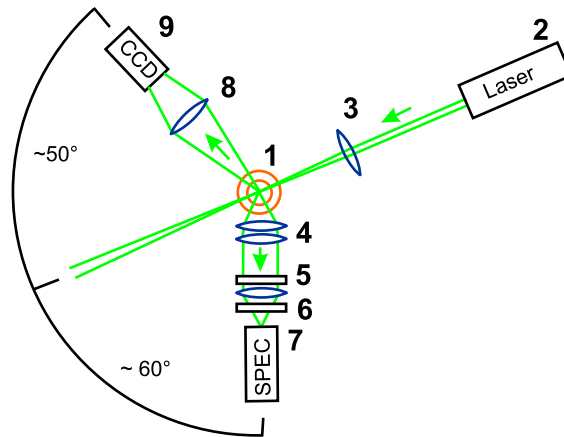


Abbildung 3.14: Versuchsaufbau zur Aufnahme von Raman-Streuspektren bei gleichzeitiger Tropfengrößenmessung: Falle (1), Laser mit 488 nm Wellenlänge (2), Linse (3), Linsenpaar (4), Polarisationsfilter (5), Interferenzfilter (6), Spektrograph (7), Linse (8), CCD-Kamera (9). Gleichzeitig wird die Regelung der vertikalen Tropfenposition in Abbildung 3.1 eingesetzt, allerdings mit einem 450-nm-Laser.

winkel durch zwei Linsen (4) mit einer Brennweite von jeweils 80 mm gesammelt. Zusammen mit einer weiteren Linse mit 40 mm Brennweite wird der Tropfen auf den Eintrittsspalt eines Spektrographen (7) abgebildet. Ein Interferenzfilter (6) im Strahlengang blockiert Licht mit Wellenlängen unter 550 nm. Dadurch wird vermieden, dass das um mehrere Größenordnungen stärkere elastisch gestreute Licht durch diffuse Streuung im Spektrographen (7) die Messung stört. Elastisch gestreutes Licht ist Licht mit unveränderter Wellenlänge (hier 488 nm). Ein Polarisationsfilter (5) (dichroitischer Polarisationsfilter) lässt im Wesentlichen nur senkrecht zur dargestellten Ebene polarisiertes Licht zum Spektrographen durch, das heißt jenes Licht, dessen Polarisation bei der Streuung erhalten blieb. Als Detektor wurde ein Gitter-Spektrograph (7) mit einer Brennweite von 500 mm und einer Blendenzahl von 6,5 zusammen mit einer durch Mikrokanalplatten bildverstärkten CCD-Kamera eingesetzt. Der mittlere Streuwinkel des mit dem Spektrographen (7) untersuchten Lichts beträgt etwa 60° zur Vorwärtsstreuung.

Um die Tropfengröße während der Verdunstung der Tropfen zu bestimmen, wird die winkelabhängige Intensität des elastisch gestreuten Lichts in einem Bereich von 46° bis 59,6°, gemessen zur Richtung der Vorwärtsstreuung, mit einer CCD-Kamera (9) in der Brennebene einer Linse (8) detektiert. Diese Tropfengrößenbestimmung wurde bereits in Abschnitt 3.2.4 vorgestellt.

Dieser Versuchsaufbau eignet sich gut für die Temperaturmessungen in

Kapitel 7, denn durch den großen optischen Zugang der Falle kann hinreichend viel Leistung aus der Raman-Streuung für die Temperaturmessung gesammelt werden. Neben der Fokussierung des Laserstrahls trägt auch die gegenüber den vorigen Versuchsaufbauten reduzierte Wellenlänge durch Erhöhung der Streurate zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses bei.

## Teil II

### Anwendungen der Falle mit optischen Messtechniken



# Kapitel 4

## Lichtstreuung von Femtosekundenpulsen an Tropfen

*Auf der Lichtstreuung an einzelnen Tropfen beruhen heute viele optische Spray-Messtechniken, die zum Beispiel in Verbrennungsmotoren, in der Atmosphäre oder in Sprühtrocknern eingesetzt werden können [34]. Teilweise werden dabei Informationen aus einem Interferenzmuster gewonnen, wie auch in dieser Arbeit im Abschnitt 3.2.4 oder in Kapitel 5. Allerdings können in anderen Fällen solche Interferenzeffekte stören. Zum Beispiel verhindern Strukturresonanzen bei monochromatischem Laserlicht die exakte intensitätsbasierte Tropfengrößemessung in Einzelaufnahmen eines Sprays. Auch bei der Brechungsindexbestimmung von Tropfen mit der Regenbogenmesstechnik, wie sie im Abschnitt 3.2.5 erklärt wird, stört Interferenz teilweise.*

*In diesem Kapitel wird gezeigt, wie Bakic et al. [2] die neue elektrodynamische Falle erfolgreich einsetzen, um zum ersten Mal experimentell nachzuweisen, dass Strukturresonanzen in Wassertropfen von etwa  $50\mu\text{m}$  Durchmesser bei der Beleuchtung mit einem Femtosekundenpuls-Laser verhindert werden. Dies liefert einen wichtigen Beitrag zur Entwicklung einer neuen intensitätsbasierten Messtechnik für Tropfen und Partikel.*

### 4.1 Strukturresonanzen in kugelförmigen Tropfen in Theorie und Experiment

Dielektrische Kugeln, wie zum Beispiel kugelförmige Tropfen, wirken für Licht als Resonator. Dieses Phänomen ist unter dem Namen „Strukturresonanz“, „morphology dependent resonance (MDR)“ oder „whispering gal-

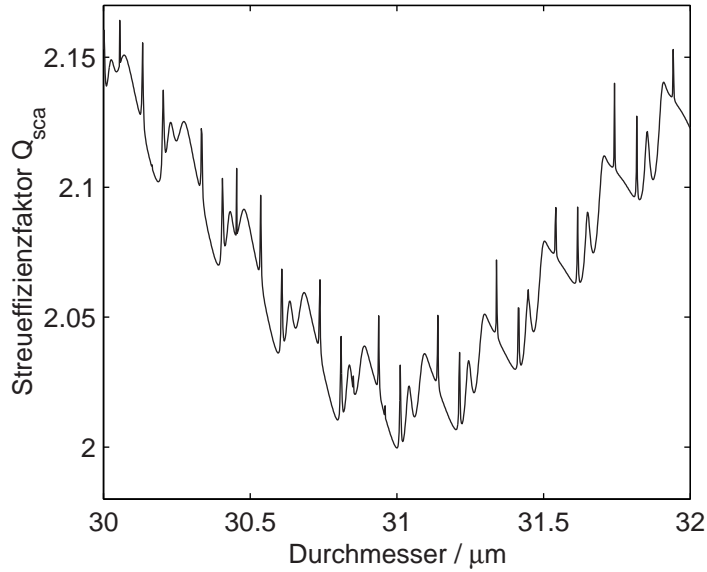


Abbildung 4.1: Berechnung des Streueffizienzfaktors für eine dielektrische Kugel als Funktion ihres Durchmessers. Sie wurde nach der Mie-Theorie mit dem Algorithmus von Bohren und Huffman [35] für Brechungsindex 1,333 und Wellenlänge 780 nm durchgeführt.

lery mode“ bekannt. Vereinfacht kann man Strukturresonanzen in Kugeln erklären, in dem man Licht betrachtet, das sich durch Reflexion innerhalb der Kugel entlang der Oberfläche ausbreitet. Beträgt der Kugelumfang ein Vielfaches der Lichtwellenlänge in der Kugel, bildet sich durch konstruktive Interferenz eine stehende Welle. Diese konstruktive Interferenz führt zu einer Erhöhung der mittleren Energiedichte, die Resonanzphänomene allgemein auszeichnet.

Exakt werden Strukturresonanzen in einer dielektrischen Kugel unter Beleuchtung mit einer ebenen Welle durch die Mie-Theorie [36] beschrieben. Das elektromagnetische Feld wird nach dieser Theorie in das Feld der einfallenden Welle und der gestreuten Wellen aufgeteilt und durch Entwicklung nach Kugelflächenfunktionen berechnet. Bohren und Huffman [35] geben einen Algorithmus zur numerischen Berechnung an. Damit lässt sich für eine Kugel mit Radius  $R$  unter anderem der Streueffizienzfaktor  $Q_{sca} = C_{sca}/(\pi R^2)$  berechnen, der gleich dem Verhältnis des Streuquerschnitts  $C_{sca}$  zur geometrischen Querschnittsfläche  $\pi R^2$  ist. Der Streuquerschnitt ist wiederum definiert als das Verhältnis der insgesamt gestreuten Leistung zur einfallenden Bestrahlungsstärke. Abbildung 4.1 zeigt den Streueffizienzfaktor als Funktion des

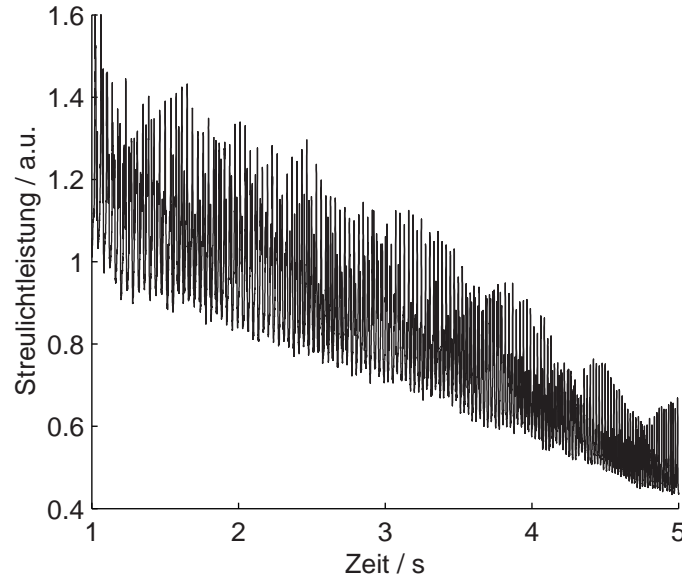


Abbildung 4.2: Experimentell gemessene Streulichtleistung im Winkelbereich von  $\pm 18^\circ$  um die Streurichtung  $\phi = 79^\circ$  und  $\theta = 0^\circ$  während der Verdampfung eines Wassertropfens unter Beleuchtung mit cw-Laserlicht von etwa 780 nm Wellenlänge.

Kugeldurchmessers für Licht von etwa 780 nm Wellenlänge und für einen Brechungsindex von 1,333. Dort sind in regelmäßigen Abständen Maxima und Minima zu sehen, die als Resonanzen verschiedener Breite identifiziert werden können. Weitere theoretische Berechnungen dazu werden in dem Artikel von Bakic et al. [2] vorgestellt.

Experimentell wurden Strukturresonanzen an einzelnen verdampfenden Wassertropfen von anfänglich etwa  $50 \mu\text{m}$  Durchmesser in der neuen elektrodynamischen Falle untersucht. Dazu wurde der Versuchsaufbau aus Abschnitt 3.2.1 verwendet. Abbildung 4.2 zeigt das Signal der Photodiode, auf der das Streulicht in einem Winkelbereich von  $\pm 18^\circ$  gesammelt wurde. Man erkennt, wie zwar die Intensität im Mittel abnimmt, während der Tropfen verdampft. Das Signal schwankt jedoch um etwa  $\pm 20\%$ . Aus dem Ausschnitt in Abbildung 4.3 geht hervor, dass diese Schwankungen regelmäßige Maxima und Minima von verschiedener Breite sind, wie sie auch in den theoretischen Berechnungen in Abbildung 4.1 zu sehen sind. Analysiert man das Spektrum verschiedener Zeitfenster, ergibt sich, dass die Frequenz der Maxima mit der Zeit abnimmt, wie es bei einer Tropfenverdampfung nach dem  $D^2$ -Gesetz (Gleichung 3.2) zu erwarten ist. Dies bestätigt, dass hier Resonanzen

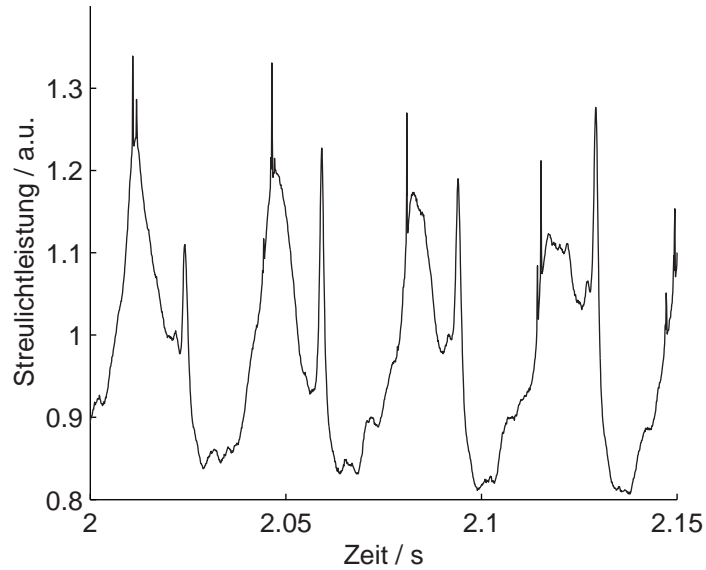


Abbildung 4.3: Ausschnitt aus Abbildung 4.2

beobachtet wurden und nicht periodischen Störungen, die einen externen Ursprung haben.

Aufgrund der hier demonstrierten Resonanzen ist es nicht möglich, aus einem Wert der gestreuten Leistung den Tropfendurchmesser eindeutig zu bestimmen. Deshalb wird im nächsten Abschnitt untersucht, wie sich diese Resonanzen vermeiden lassen.

## 4.2 Unterdrückung von Strukturresonanzen durch Verwendung von Femtosekundenpulsen im Experiment

In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie die neue elektrodynamische Falle erfolgreich eingesetzt wurde, um erstmals das Verschwinden der zuvor gezeigten Strukturresonanzen bei Beleuchtung mit Femtosekundenpulsen nachzuweisen.

Voraussetzung für das Auftreten von Strukturresonanzen ist eine hinreichend kleine spektrale Breite der Lichtquelle. Daher besteht eine Möglichkeit Strukturresonanzen zu vermeiden darin, das Spektrum der Lichtquelle zu verbreitern. Ein hinreichend breites Spektrum lässt sich unter anderem durch hinreichend kurze Laserpulse realisieren. Hier wurde ein Femtosekundenpuls-Laser eingesetzt, in dem Pulse durch Modenkopplung („mode locking“) mit

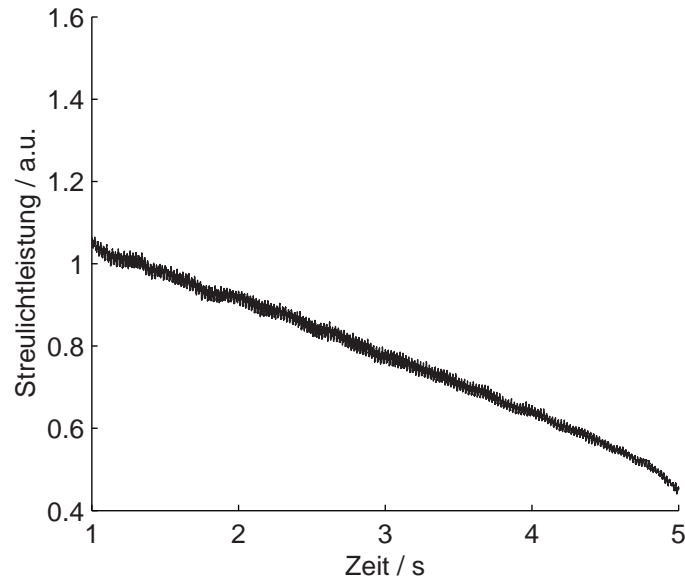


Abbildung 4.4: Experimentell gemessenen Streulichtleistung wie in Abbildung 4.2, jedoch unter Beleuchtung mit Laserpulsen von etwa 200 fs Pulsdauer.

einer Kerr-Linse erzeugt werden. Anschaulich kann das Verschwinden von Strukturresonanzen durch ein vollständiges „Verwaschen“ der Resonanzen in Abbildung 4.3 erklärt werden, da die Resonanzen verschiedener Wellenlängen bei verschiedenen Tropfengrößen auftreten. Numerische Simulationsergebnisse dazu sind in [2] zu finden.

Auch thermische Weißlichtquellen erfüllen in der Regel die Voraussetzungen für das Verschwinden der Resonanzen, Laser bieten jedoch ihnen gegenüber wesentlich höhere Leistungsdichten und bessere Strahleigenschaften, die vor allem für die Kombination mit weiteren Messtechniken wichtig sind. Deshalb wurde hier ein gepulster Laser verwendet, wie es für Messungen in Sprays zum Beispiel bei der Particle Image Velocimetry (PIV), allerdings mit längeren Pulsen, üblich ist.

Abbildung 4.4 zeigt das zu Abbildung 4.2 entsprechende Signal, nachdem der Laser auf Pulsbetrieb umgeschaltet wurde. Die zeitliche Schwankung des Signals ist hier deutlich geringer. In der Vergrößerung (Abbildung 4.5) sieht man, dass die für Resonanzen typische Signalform verschwunden ist. Die verbleibenden harmonischen Oszillationen haben konstante Frequenzen von 50 Hz und 100 Hz. Sie entstehen durch kleine Schwingung der Tropfenposition im Profil des Laserstrahls und durch elektromagnetische Störungen aus dem elektrischen Versorgungsnetz.

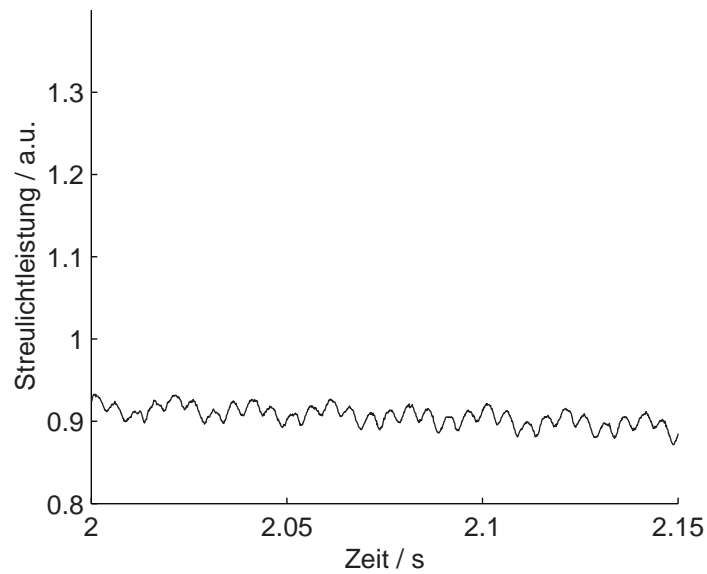


Abbildung 4.5: Ausschnitt aus Abbildung 4.4

### 4.3 Zusammenfassung

Damit wurde erfolgreich nachgewiesen, dass in verdampfenden Wassertropfen von anfänglich  $50\,\mu\text{m}$  Durchmesser bei der Beleuchtung mit Laserpulsen einer Dauer von 200 fs keine Strukturresonanzen auftreten. Von Bakic et al. [2] wurde auch das teilweise Verschwinden von Interferenzeffekten bei der Winkelabhängigkeit der Streuung experimentell nachgewiesen. Dies ermöglicht genauere Bestimmung des Brechungsindex mit der Regenbogenmesstechnik.

## Kapitel 5

# Lichtstreuung an dielektrischen Kugeln mit einem exzentrischen Einschluss

*In der Natur und in technischen Prozessen begegnet man häufig auch inhomogenen Tropfen, zum Beispiel Wassertropfen mit Eispartikeln in der Atmosphäre oder Tropfen mit kristallisierten Einschlüssen in Sprühtrocknern. Dieses Kapitel widmet sich deshalb einem besonderen Fall inhomogener Tropfen: kugelförmige Tropfen mit einem kugelförmigen exzentrischen Einschluss. Diese findet man zum Beispiel bei der Anwendung gekapselter Indikatoren [4] in kleinen Tropfen, möglicherweise auch über der Meeresoberfläche. Für die Anwendung streulichtbasierter Messtechniken in Sprays und Aerosolen ist es in der Regel sinnvoll, die Winkelabhängigkeit des Streulichts der Einzeltropfen zu kennen. Deshalb werden in diesem Kapitel zum ersten Mal winkelabhängige Streulichtaufnahmen von kugelförmigen Wassertropfen mit einem einzelnen exzentrischen Lufteinschluss vorgestellt. Nach einer Einführung in Abschnitt 5.1 werden im Abschnitt 5.2 Bilder solcher Tropfen gezeigt, die durch direkte Abbildung mit einem Mikroskopobjektiv entstanden sind. Im Abschnitt 5.3 werden experimentell beobachtete Glanzpunkte gezeigt, die gut mit theoretischen Berechnungen nach geometrischer Optik übereinstimmen. Dies bestätigt, dass es sich um Tropfen mit einem kugelförmigen Lufteinschluss handelt. Im Abschnitt 5.4 wird erstmals eine Streulichtmessung an einem solchen Tropfen über einen Winkelbereich von  $120^\circ$  vorgestellt. Im Abschnitt 5.5 wird beschrieben, wie erstmals erfolgreich durch Analyse des winkelabhängigen Streulichts die Durchmesser und der Abstand von Tropfen und Blase auf  $\pm 1,5 \mu\text{m}$  genau bestimmt wurden. Durch zeitaufgelöste Messung lässt sich eine Bewegung der Blase erkennen.*

## 5.1 Einführung

In der Natur und in industriellen Prozessen treten häufig homogene Flüssigkeitstropfen auf, die bei hinreichend kleinem Volumen wegen der Oberflächenspannung als kugelförmig betrachtet werden können. So zum Beispiel in Dieselmotoren bei der Einspritzung des Kraftstoffs, in Wassertropfen in der Atmosphäre oder unmittelbar nach der Einspritzung von Lösungen in Sprühtrocknern. Die Lichtstreuung an solchen Tropfen ist heute sehr gut bekannt und wird Mie-Streuung nach Gustav Mie [36] genannt. Seitdem ist sie die Basis vieler Messtechniken für Tropfen, Partikel und partikelbeladene Strömungen.

Diese Tropfen stellen jedoch nur einen Sonderfall dar: In der Atmosphäre kann sich in Wassertropfen Eis bilden oder Wassertropfen können Feststoffpartikel aus der Umgebung aufnehmen; in Sprühtrocknern können sich Kristalle beim Verdunsten des Lösungsmittels bilden, beim Versprühen von Pflanzenschutzmitteln können Emulsionen oder Suspensionen eingesetzt werden. In diesen Fällen liegen nicht-homogene Tropfen vor, deren Lichtstreuung schwieriger zu berechnen ist. Die exakte Berechnung der Lichtstreuung an beliebigen Tropfen ist aufgrund des Rechenaufwands bisher nicht möglich. Eine sinnvolle Vorgehensweise ist es daher, von kugelförmigen homogenen Tropfen schrittweise zu immer komplexeren Strukturen überzugehen. So wurde von Aden und Kerker [37] das Problem der Lichtstreuung an dielektrischen konzentrischen Kugeln gelöst. Borghese et al. [3] geben einen neuen Formalismus an, mit dem sie auch die Streuung an einer dielektrischen Kugel mit einem kugelförmigen, nicht-konzentrischen Einschluss berechnen können. Ihre Ergebnisse konnten sie nicht mit experimentellen Daten vergleichen, weil bis heute keine vorhanden waren. In meiner Arbeit konnte ich zum ersten Mal einzelne Wassertropfen von etwa  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser beobachten, die eine einzelne Luftblase enthalten.

Wie in Abschnitt 3.1.1 vorgestellt, habe ich in meinen Experimenten Tropfen mit dem Druckkopf eines Tintenstrahldruckers erzeugt, der mit dem Bubblejet-Verfahren arbeitet. Das bedeutet, Tropfen werden durch eine kleine Dampfblase herausgedrückt, die durch Heizung mit einem elektrischen Puls erzeugt wird. Die Entstehung der Luftblase in den Tropfen ist bisher nicht bekannt, ihre Erforschung kann aber für Entwicklungen im Bereich Mikrofluidik entscheidende Fortschritte bringen. Die in dieser Arbeit zum ersten Mal in diesem Größenbereich angewandte Methode zur Messung der Größe und Position der Blase kann dabei von großem Vorteil sein. Da es zur Entstehung der Blase keine wissenschaftlichen Untersuchungen gab, kann nicht ausgeschlossen werden, dass diese auch in Prozessen in der Atmosphäre, an der Meeresoberfläche oder in Sprays in Verbrennungsmotoren entstehen.



Für technische Anwendungen werden zuweilen Kugeln mit einzelnen Einschlüssen gezielt hergestellt: Zum Beispiel werden thermochrome Flüssigkristalle in Kügelchen gekapselt um sie zur optischen Temperaturmessung in Strömungen einzusetzen. Auch in diesem Fall ist es sinnvoll, ihre Eigenschaften bezüglich der Lichtstreuung zu kennen.

Die Untersuchungen in diesem Kapitel liefern also einen wichtigen Beitrag zur Überprüfung und damit zur Weiterentwicklung von Theorien zur Lichtstreuung an nicht homogenen Tropfen und Partikeln. Zugleich wird ein Messverfahren angewendet, das auf der Näherung der geometrischen Optik basiert und es erlaubt, die Struktur der hier beobachteten Tropfen zu vermessen.

## 5.2 Direkte Abbildung bei gleichzeitiger Laser- und Weißlichtbeleuchtung

Abbildung 5.1 zeigt Bilder eines Tropfens, der von einer wassergefüllten Patrone vom Typ HP51604A eines Tintenstrahldruckers erzeugt wurden. Abbildung a wurde unmittelbar nach der Stabilisierung des Tropfens in der Falle mit einem Mikroskopobjektiv mit einer Numerischen Apertur von 0,28 und einer CCD-Kamera aufgenommen. Die Abbildungen b bis d wurden zeitlich aufeinanderfolgend am gleichen Tropfen aufgenommen. Der Tropfen wurde von einem Laser mit 532 nm Wellenlänge und etwa 2 mm Strahldurchmesser beleuchtet. Zusätzlich wurde der Tropfen schräg von hinten durch eine Weißlichtquelle bestrahlt. Die Kamera ist bei einem mittleren Streuwinkel von  $121,3^\circ$  zur Vorwärtsstreuung positioniert. Die weißen horizontalen Linien wurden eingezeichnet, um die Veränderungen des Tropfens besser erkennbar zu machen.

Im Bild a ist ein Tropfen zu sehen, der im oberen Teil eine weitere kreisförmige Struktur von etwa halbem Durchmesser enthält. Dieser Bereich wird später als Luftblase identifiziert. Im Abschnitt 5.5 wird die Größe des Wassertropfens mit der bereits in Abschnitt 3.2.4 vorgestellten Methode bestimmt. Zusätzlich wird die Größe der Blase und der Abstand zwischen den Oberflächen durch Glanzpunktberechnungen mit einer Messunsicherheit von  $\pm 1,5 \mu\text{m}$  erfolgreich ermittelt. Damit lässt sich auch die Bewegung der Blase innerhalb des Tropfens quantifizieren, die sich zwischen den Bildern a bis c erahnen lässt und die an den mit Pfeilen gekennzeichneten Stellen am besten zu erkennen ist. Abbildung d zeigt den Tropfen, wenn etwa eine halbe Sekunde nach der Erzeugung die Luftblase den Tropfen verlassen hat und sich dadurch seine Größe verringert hat.

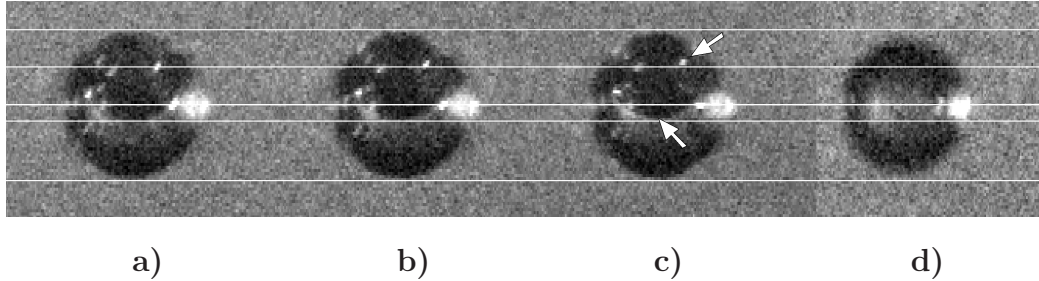


Abbildung 5.1: a) bis c): Aufnahme eines Wassertropfens, beobachtet bei einem mittleren Streuwinkel von  $\phi = 121,3^\circ$  ( $0^\circ$  = Vorwärtsstreuung, siehe Abbildung 3.6) durch ein Mikroskopobjektiv mit einer Numerischen Apertur von 0,28. d): Aufnahme nach dem Zerplatzen des Lufteinschlusses. a) bis d) sind zeitlich geordnet und es handelt sich um denselben Tropfen. Der Tropfen wird von einem Laser der Wellenlänge 532 nm beleuchtet und zusätzlich schräg durch eine Weißlichtquelle. Das Laserlicht ist linear polarisiert, die Polarisationsrichtung ist gegenüber der Ebene Laserstrahl-Detektor um  $45^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht (Blick in Strahlrichtung). Bei genauem Hinsehen lässt sich eine Bewegung der Blase innerhalb des Tropfens erkennen.

Die hellen Punkte, die in den Abbildungen 5.1 a bis d zu sehen sind, werden im Abschnitt 5.3 als Glanzpunkte identifiziert und genauer untersucht. Dabei zeigen die theoretisch berechneten Glanzpunkte eine gute Übereinstimmung mit den experimentell beobachteten.

Die Bestimmung der Größen und des Abstands von Tropfen und Luftblase wird in Abbildung 5.1 durch folgendes erschwert: Der Rand von Tropfen und Blase ist nicht scharf abgegrenzt und die Intensitätsverteilung dort hängt von der Beleuchtung und insbesondere vom Abstand des Tropfens zur scharf gestellten Ebene ab. Außerdem wird die Abbildung der Blase durch die Linsenwirkung der Tropfenoberfläche verändert. Aus diesen Gründen wurde statt dessen im Abschnitt 5.5 das Streulicht des Tropfens im Fernfeld unter Laserbeleuchtung zur Messung verwendet.

### 5.3 Beobachtung von Glanzpunkten

Die Berechnung von Glanzpunkten für kugelförmige homogene Tropfen und Partikel ist gut bekannt [40], für nicht-homogene Tropfen für kleine Durchmesser am Rand der Anwendbarkeit geometrischer Optik jedoch nicht. In diesem Abschnitt werden zum ersten Mal experimentell Glanzpunkte von Wassertropfen mit weniger als  $100 \mu\text{m}$  Durchmesser mit einem Lufteinschluss

gezeigt. Glanzpunkte sind für die Anwendung verschiedener Partikelmess-techniken wie der Phase Doppler Anemometrie (PDA) wichtig, die bis heute zu wichtigen Fortschritten bei Verbrennungsmotoren beigetragen hat.

Nach Van de Hulst und Wang [40] versteht man unter Glanzpunkten die Intensitätsmaxima im Bild eines Tropfens, der aus einer bestimmten Richtung beobachtet und mit einem weiten parallelen Strahl beleuchtet wird. Um demnach Glanzpunkte im Rahmen der geometrischen Optik zu finden, sind diejenigen Strahlen des einfallenden Bündels zu finden, die nach Brechungen oder Reflexionen den Tropfen in einem Winkelbereich verlassen, der vom Abbildungssystem abgedeckt wird, und schließlich im Bild zu Intensitätsmaxima führen. Abbildung 5.2 zeigt als Beispiel die berechneten Glanzpunkte bis zur 2. Ordnung für eine feste Beobachtungsrichtung von  $\phi = 35^\circ$  und  $\theta = 0^\circ$  bei einem Radius  $R$  des Tropfens (Brechungsindex  $n_o = 1,333$ ), einem Radius  $0,5R$  der Blase (Brechungsindex  $n_i = 1$ ) und einem Abstand  $0,15R$  zwischen den Oberflächen. Blase und Tropfen sind um die  $z$ -Achse zentriert. Das Diagramm rechts unten zeigt den Tropfen in Aufsicht. Wie die Pfeile andeuten wird er von links beleuchtet und die Strahlen verlassen den Tropfen um  $35^\circ$  gestreut nach rechts oben. Die Punkte an denen die Strahlen gebeugt oder gebrochen werden sind mit  $+$ ,  $\times$  und  $\circ$  markiert. Senkrecht zu dieser Richtung, in der die Glanzpunkte beobachtet werden, liegt die Objektebene, auf die die Abbildung scharf gestellt wird. Darauf liegen die Glanzpunkte in der Verlängerung der austretenden Strahlen. Das Diagramm rechts oben zeigt die gleiche Anordnung in Vorderansicht, jedoch ohne Objektebene. Links ist die Objektebene mit den Glanzpunkten aus der Sicht des Beobachters, das heißt senkrecht zur Objektebene, gezeigt.

Abbildung 5.3a zeigt wie Abbildung 5.1 das experimentell aufgenommene Bild eines Tropfens mit einer Luftblase, allerdings ohne diffuse Weißlichtbeleuchtung. Der Tropfen wird von einem Laser der Wellenlänge 532 nm beleuchtet und wird in der Richtung  $\phi = 121,3^\circ$  und  $\theta = 0$  mit einer CCD-Kamera und einem Mikroskopobjektiv mit einer Numerischen Apertur von 0,28 beobachtet, wobei die Winkel in Abbildung 3.6 als positive Winkel eingezeichnet sind. Das Laserlicht ist linear polarisiert und die Polarisations-ebene ist gegenüber der  $x$ - $y$ -Ebene um  $45^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht (Blick in Strahlrichtung). Die Abbildungen 5.3b bis d folgen zeitlich aufeinander und zeigen denselben Tropfen. In Abbildung d hat die Blase den Tropfen verlassen. Anhand der eingezeichneten weißen Hilfslinien lassen sich von a bis c leichte Veränderungen erkennen, die mit der Bewegung der Blase zusammenhängen (siehe Abschnitt 5.5). Da der Bereich der Graustufen der CCD-Kamera beschränkt ist, wurde durch teilweise Übersättigung ein Kompromiss zwischen der Sichtbarkeit schwächerer Glanzpunkte und dem Verwaschen heller Glanzpunkte gewählt.

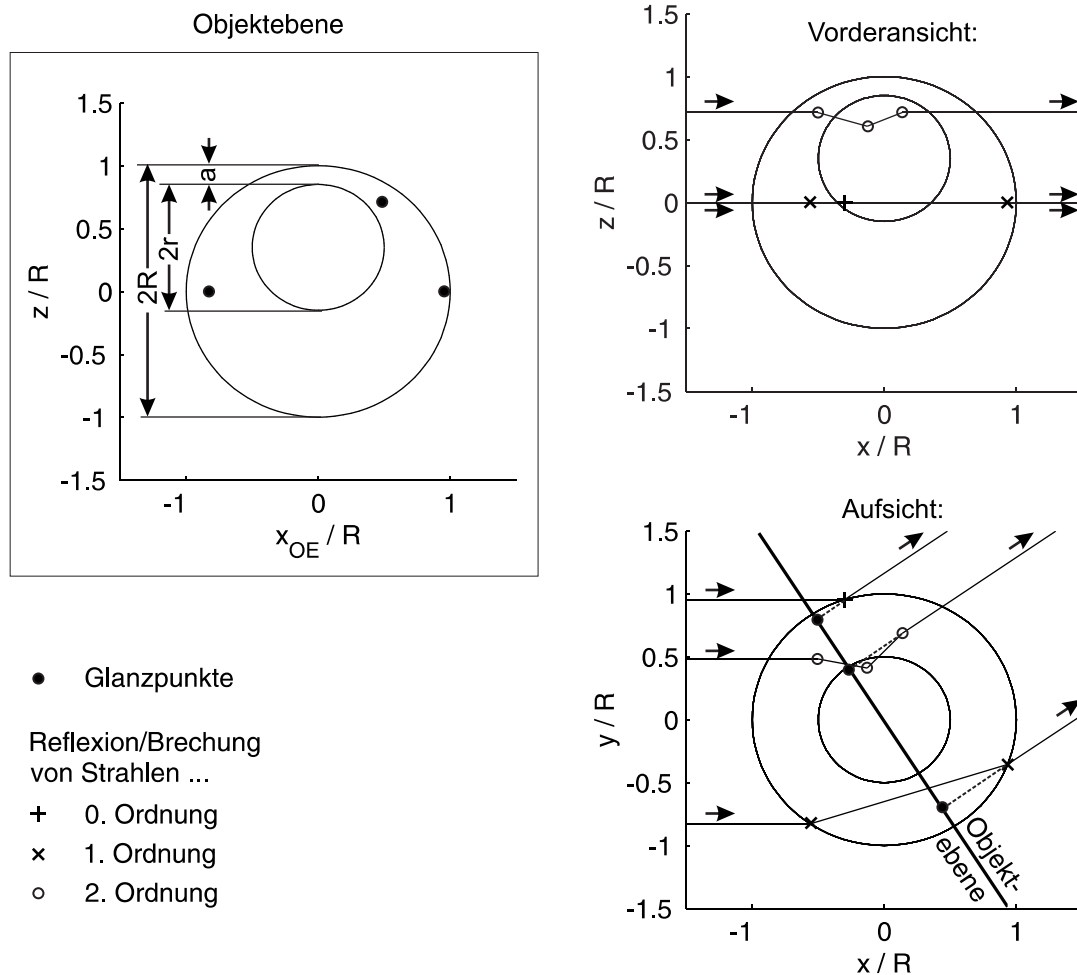


Abbildung 5.2: Theoretische Berechnungen der Glanzpunkte in der Beobachtungsrichtung  $\phi = 35^\circ$ ,  $\theta = 0$  für einen Kugel mit Brechungsindex 1,333 und beliebigem Radius  $R$  mit einem kugelförmigen Loch mit einem Radius  $r = 0,5R$ . Die Kugeln liegen symmetrisch zur  $z$ -Achse. Der kleinste Abstand zwischen den Oberflächen beträgt  $a = 0,15R$ . Objektebene: Ebene senkrecht zur Beobachtungsrichtung, mit Glanzpunkten 0., 1. und 2. Ordnung und Schnitt mit den Oberflächen der Kugeln. Vorderansicht: Schnitt mit den Kugeloberflächen, Projektion der Strahlen der Glanzpunkte (Linien) und der Punkte, an denen die Strahlen reflektiert oder gebrochen werden (+, x, o). Pfeile geben die Strahlrichtung an. Aufsicht: Zusätzlich ist die Objektebene eingezeichnet mit den Glanzpunkten in der Verlängerung der austretenden Strahlen.

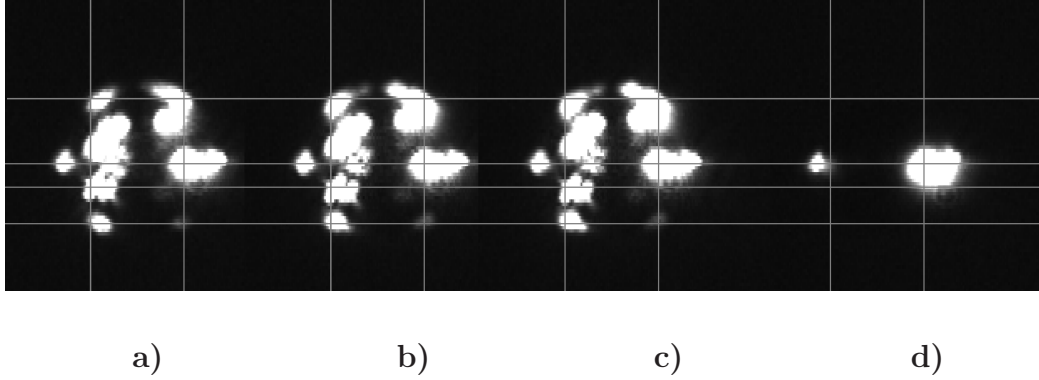


Abbildung 5.3: a)-c) Glanzpunkte eines Wassertropfens, beobachtet bei einem mittleren Streuwinkel von  $\phi = 121,3^\circ$  ( $0^\circ =$  Vorwärtsstreuung, siehe Abbildung 3.6) durch ein Mikroskopobjektiv mit einer Numerischen Apertur von 0,28. d) nach dem Zerplatzen des Luftpneinschlusses. a)-d) sind zeitlich geordnet und es handelt sich um denselben Tropfen. Der Tropfen wird von einem Laser der Wellenlänge 532 nm beleuchtet. Polarisation wie in Abbildung 5.1

Die Aufnahme c wird auch in Abbildung 5.4 im Hintergrund gezeigt und mit theoretisch berechneten Glanzpunkten verglichen. Die theoretischen Berechnungen sind rein geometrisch. Jeder Punkt stellt den Schnittpunkt der Objektebene (siehe Abbildung 5.9) mit einem berechneten Strahl dar, der den Tropfen innerhalb eines Kegels von  $\pm 16,26^\circ$  um die Beobachtungsrichtung verlässt. Dies entspricht der Numerischen Apertur des Mikroskopobjektivs von 0,28. Um die austretenden Strahlen zu berechnen, wurde ein Gitter von Strahlen mit einer Maschenweite von  $0,0125R$  in  $y$ - und in  $z$ -Richtung durch das Reflexionsgesetz und Brechungsgesetz von Snellius durch den Tropfen verfolgt. Dabei wurden zur Vereinfachung keine Polarisierungen berücksichtigt und keine Intensitäten berechnet. In Abbildung 5.4 wurden alle Strahlen bis zur 5. Ordnung eingetragen und einige der 6. Ordnung. Die Punkte sind mit ihrer Ordnung wie in Tabelle 5.1 nach der Reihenfolge von Reflexionen (R) und Transmissionen (T) an der inneren (i) und äußeren (o) Oberfläche beschriftet. Im Sinne von Van de Hulst und Wang [40] stellt nicht jeder dieser Punkte einen Glanzpunkt dar, sondern die Punkte decken einen Bereich ab, in dem Glanzpunkte, das heißt Intensitätsmaxima, liegen.

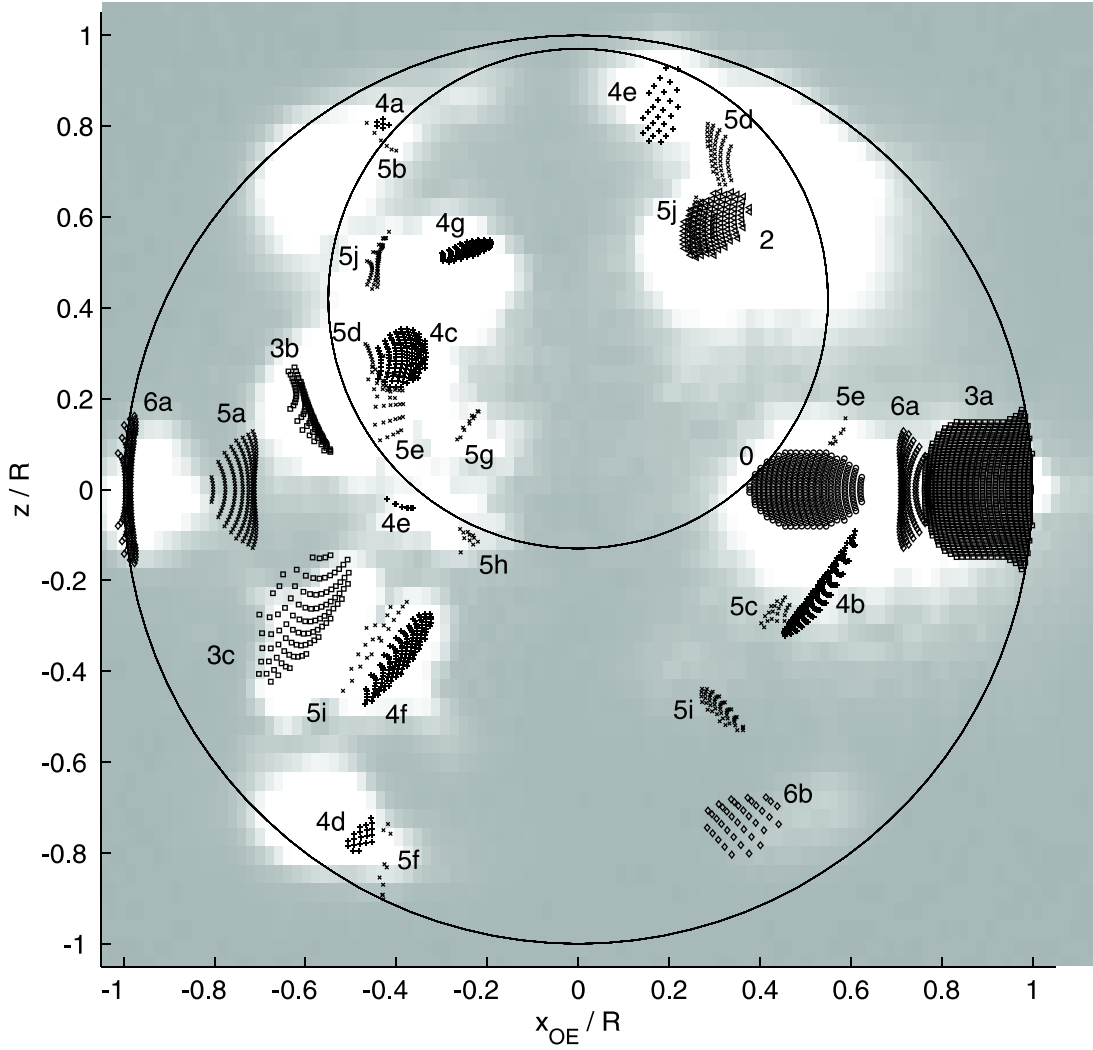


Abbildung 5.4: Vordergrund: Theoretisch berechnete Glanzpunkte. Parallel einfallende Strahlen in einem zweidimensionalen Raster (Maschenweite  $0,0125R$ ) wurden durch eine dielektrische Kugel (Brechungsindex  $1,333$ ) mit einem kugelförmigen Loch (Brechungsindex  $1$ ) verfolgt. Der Mittelpunkt der beiden Kugeln liegt auf der  $z$ -Achse. Alle Längen sind auf den Radius  $R$  der Außenkugel normiert. Das Loch hat einen Radius von  $0,55R$ , der Abstand der Kugeln beträgt  $0,03R$ . Ausgewählt wurden alle Strahlen, die die äußere Kugel mit einer maximalen Abweichung von  $\pm 16,26^\circ$  zur Beobachtungsrichtung verlassen, die parallel zur  $x$ - $y$ -Ebene und in einem Winkel von  $\phi = 121,3^\circ$  zur Einfallsrichtung liegt (siehe Abbildung 3.6). Hier dargestellt sind die Schnittpunkte dieser Strahlen mit der Ebene, die senkrecht zur Beobachtungsrichtung liegt und die Mittelpunkte der Kugeln enthält. Die dargestellten Punkte sind nach der Anzahl der Brechungen und Reflexionen klassifiziert und wie in Tabelle 5.1 beschriftet. Hintergrund: Experimentelle Glanzpunkte wie in Abbildung 5.3c.

Glanzpt.- Kennz.	Reihenfolge der Reflexi- onen und Transmissionen	Glanzpt.- Kennz.	Reihenfolge der Reflexi- onen und Transmissionen
0	$R_o$	5a	$T_o R_o R_o R_o R_o T_o$
2	$T_o R_i T_o$	5b	$T_o R_o R_i R_o R_i T_o$
3a	$T_o R_o R_o T_o$	5c	$T_o R_o T_i T_i R_o T_o$
3b	$T_o R_o R_i T_o$	5d	$T_o R_o T_i R_i T_i T_o$
3c	$T_o R_i R_o T_o$	5e	$T_o R_i R_o R_o R_i T_o$
4a	$T_o R_o R_o R_i T_o$	5f	$T_o R_i R_o R_i R_o T_o$
4b	$T_o R_o R_i R_o T_o$	5g	$T_o R_i R_o T_i T_i T_o$
4c	$T_o R_o T_i T_i T_o$	5h	$T_o T_i T_i R_o R_i T_o$
4d	$T_o R_i R_o R_o T_o$	5i	$T_o T_i R_i T_i R_o T_o$
4e	$T_o R_i R_o R_i T_o$	5j	$T_o T_i R_i R_i T_i T_o$
4f	$T_o T_i T_i R_o T_o$	6a	$T_o R_o R_o R_o R_o R_o T_o$
4g	$T_o T_i R_i T_i T_o$	6b	$T_o R_o R_i R_o R_i R_o T_o$

Tabelle 5.1: Kennzeichnung der Glanzpunkte in Abbildung 5.4 anhand der Reihenfolge von Transmission (T) und Reflexion (R) an der Tropfenoberfläche (o) und der Blasenoberfläche (i).

Experimentelle und theoretische Ergebnisse stimmen gut überein. Abweichungen gibt in den folgenden Bereichen: An den Bereichen 5a, 5c, 5i, 6b sind im Experiment keine Glanzpunkte zu erkennen. Vermutlich ist ihre Intensität im Vergleich zu den anderen zu gering. Dazu sind weiterführend theoretische Berechnungen empfehlenswert, die die Intensitätsverhältnisse bei Reflexion und Brechung berücksichtigen. Links neben 4a, rechts neben 5d und 6a finden sich größere helle Bereiche im experimentellen Bild, in denen keine theoretisch berechneten Glanzpunkte liegen. Besonders bei 6a könnten Oberflächenwellen eine Rolle spielen, die im Modell der geometrischen Optik nicht enthalten sind. Dies könnten wellenoptische Berechnungen zeigen, die über den Rahmen der vorliegenden Arbeit jedoch hinausgehen.

## 5.4 Fernfeldaufnahmen in einem Winkelbereich von $120^\circ$

In diesem Abschnitt wird der optischen  $360^\circ$ -Zugang der neu entwickelten Geometrie der Fallenelektroden ausgenutzt, um experimentelle Streulichtdaten von Wassertropfen mit einem einzelnen Lufteinschluss zu gewinnen, die zur Überprüfung von Theoriarbeiten wie von Borghese et al. [3] oder Ioannidou und Chrissoulidis [38] in einem großen Winkelbereich dienen können.



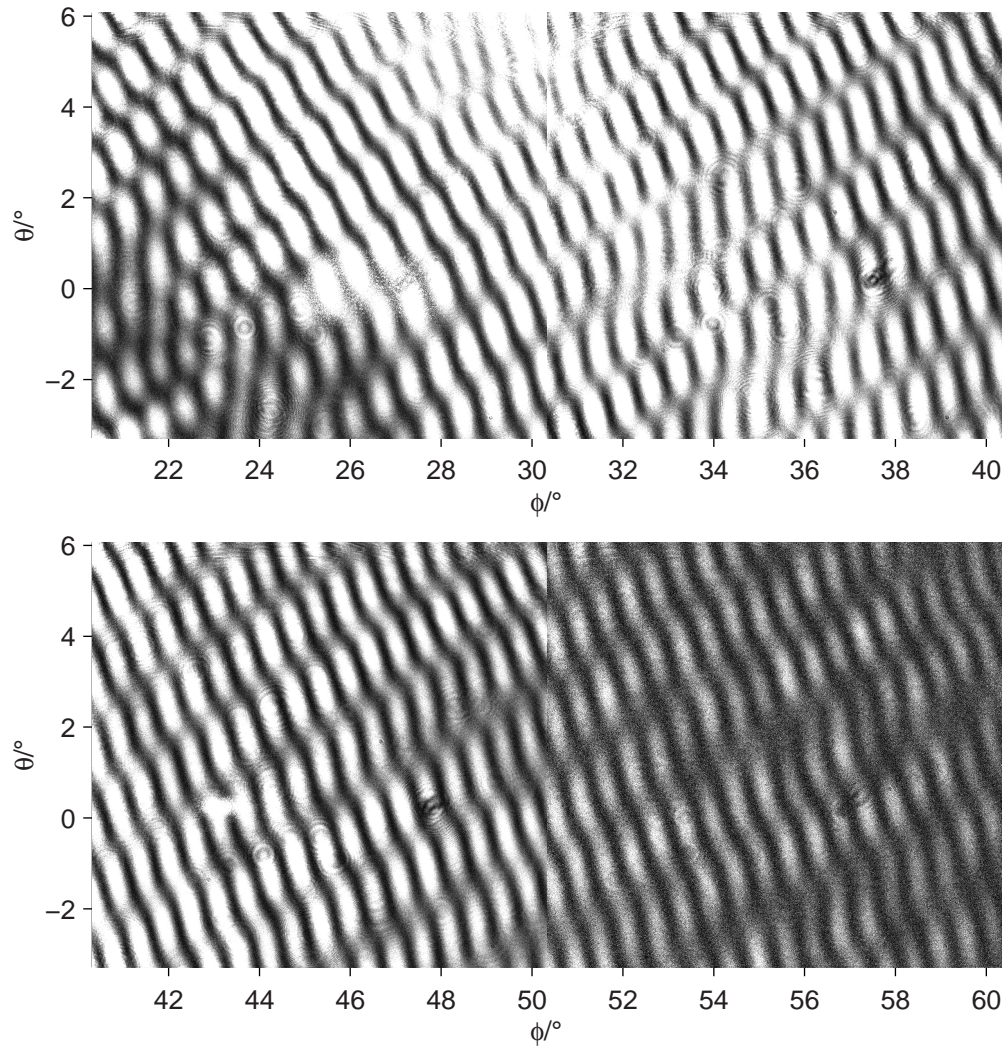


Abbildung 5.5: Lichtstreuung an einem Wassertropfen mit Lufteinschluss, gestreute Intensität in Abhängigkeit vom Winkel  $\phi$  in der waagerechten Ebene ( $0^\circ$  = Vorwärtsstreuung) und vom Winkel  $\theta$  gemessen zur waagerechten Ebene. Bereiche von jeweils  $10^\circ$  in  $\phi$  wurden gleichzeitig aufgenommen. Jeder dieser Bereiche gehört zu einem anderen Tropfen mit leicht unterschiedlichen Parametern (Radius, Radius des Lufteinschlusses, Position des Einschlusses). Die Helligkeit jedes Bereichs wurde zur besseren Sichtbarkeit separat angepaßt. Für die einzelnen Bereiche wurden diejenigen Aufnahmen gewählt die im Überlapp am besten übereinstimmen. Wellenlänge 532nm, Polarisati-on  $45^\circ$  gegenüber der Horizontalen (Ebene Laserstrahl-Detektor) gegen den Uhrzeigersinn gedreht (Blick in Strahlrichtung).



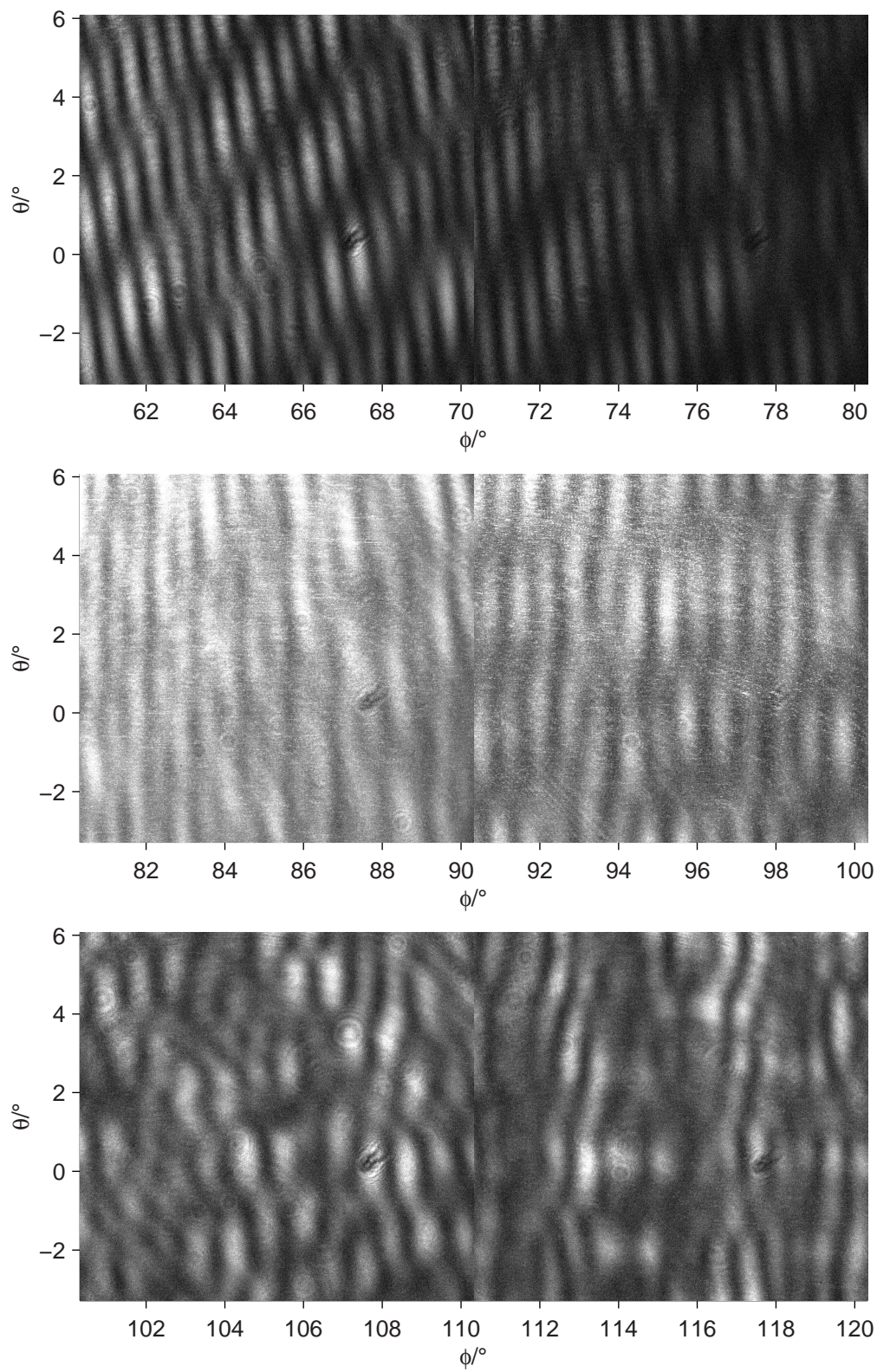


Abbildung 5.6: Siehe Abbildung 5.5.

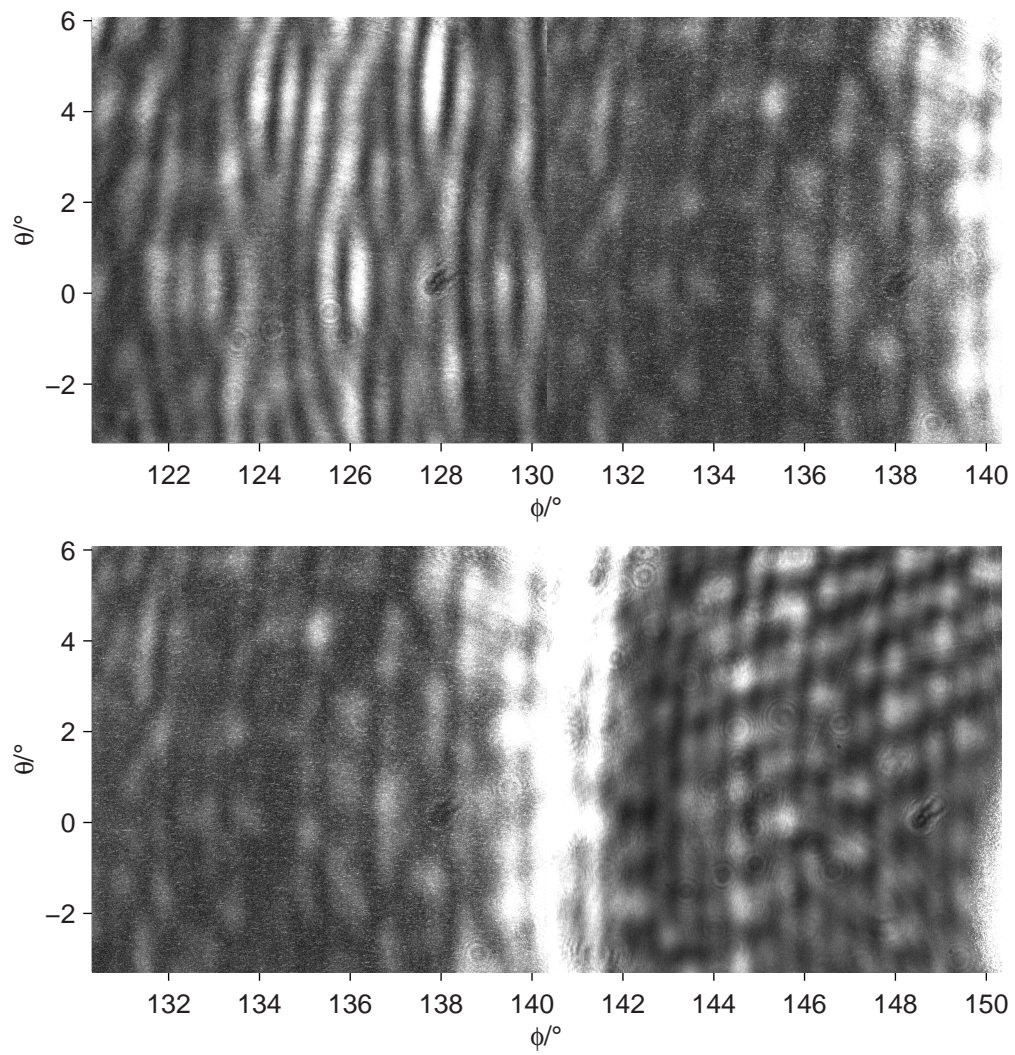


Abbildung 5.7: Siehe Abbildung 5.5.

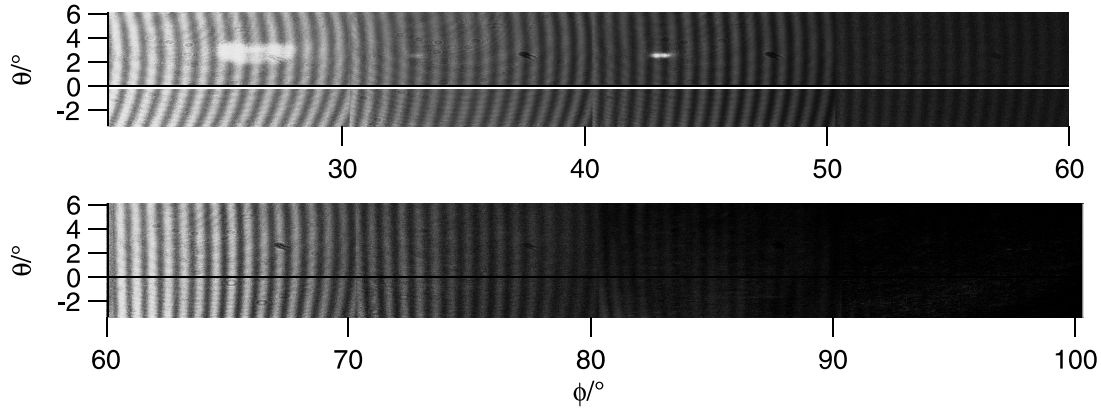


Abbildung 5.8: Lichtstreuung an einem homogenen kugelförmigen Wassertropfen unter gleichen Bedingungen wie für Abbildung 5.5

Abbildung 5.5, 5.6 und 5.7 stellen die Streuintensität im Fernfeld in Abhängigkeit des Winkels  $\theta$  zur Horizontalen und des Winkel  $\phi$  zur Laserstrahlrichtung in der Projektion auf die horizontale Ebene (siehe Abbildung 3.6) dar. Dafür wurden Tropfen mit einer kugelförmigen Luftblase von einem Laser im Dauerstrichbetrieb mit linear polarisiertem Licht von 532 nm Wellenlänge beleuchtet. Die Polarisationssebene des Laserstrahls ist gegenüber der Horizontalen bei Blick in Strahlrichtung um  $45^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht.

Das Streulicht wurde in einem Bereich von  $20,2^\circ < \phi < 150,2^\circ$  mit einem CCD-Chip in der Brennebene einer Linse aufgenommen. Abbildung 5.9 veranschaulicht, wie Strahlen, die den Tropfen im gleichen Winkel verlassen, in der Brennebene (2) in einem Punkt gebündelt werden. Durch die beschränkte Größe des CCD-Chips wurde die Aufnahmen in  $10^\circ$ -Schritten gemacht. Da die Blase im Tropfen für weniger als eine Sekunde stabil ist, stammen die Daten in jedem Abschnitt nicht von demselben Tropfen. Aus vielen Aufnahmen wurden diejenigen ausgewählt, bei denen der Überlapp am besten übereinstimmt. Trotzdem sind Kanten zu erkennen, weil die Größe und Abstand von Tropfen und Blase sowie das genaue Alter des Tropfens von Injektion zu Injektion leicht variiert. Zur besseren Sichtbarkeit der Interferenzmuster wurde bei der Darstellung außerdem die Gesamthelligkeit jedes Abschnitts unterschiedlich verändert, da die Intensitäten der Maxima mit dem Winkel um mehrere Größenordnungen variieren.

Abbildung 5.8 zeigt im Vergleich dazu die entsprechende Aufnahmen an einem homogenen Tropfen.



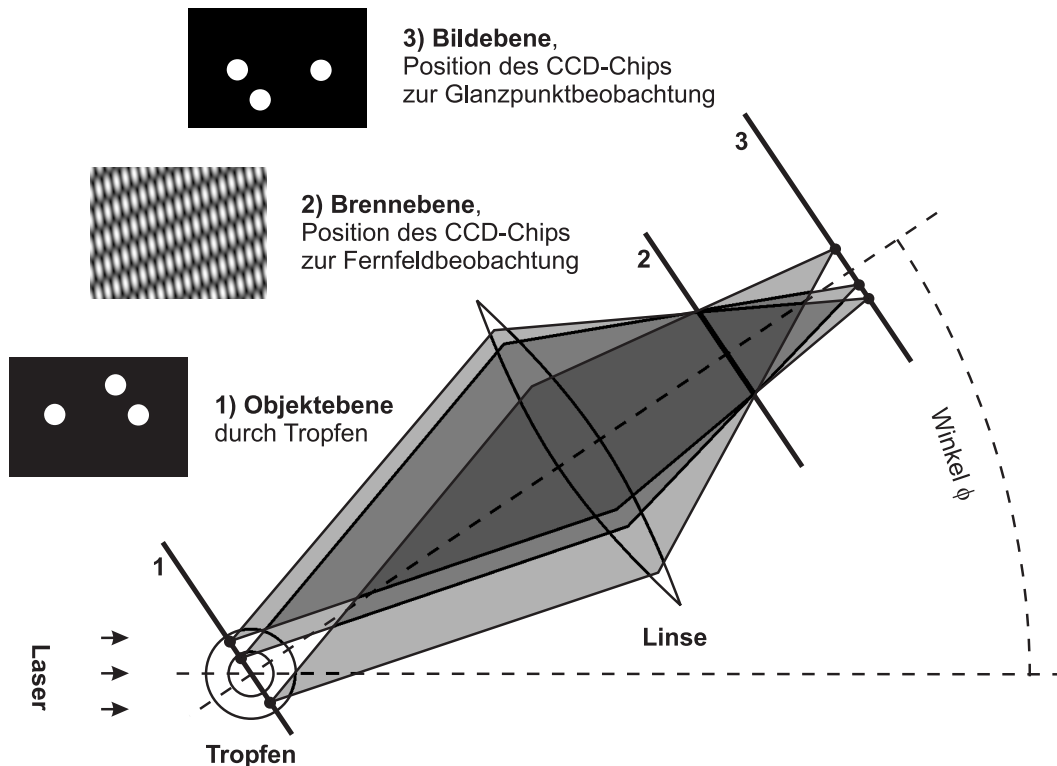


Abbildung 5.9: Ausschnitt aus dem Versuchsaufbau zur Aufnahme von Glanzpunkten und des Fernfelds der Streulichts. Blick von oben auf die  $x$ - $y$ -Ebene. Oben links sind schematisch die Intensitätsverteilungen in den drei Ebenen dargestellt. Die Objektebene im Tropfen ist nur eine gedachte Ebene.

Die Abbildungen 5.5, 5.6 und 5.7 kann man als eine Überlagerung mehrerer Streifenmuster interpretieren. Diese Muster lassen sich anschaulich wie folgt erklären: Abbildung 5.9 zeigt schematisch einen Teil des Versuchsaufbaus. Der Zusammenhang zwischen dem Lichtfeld in der Brennebene (2) einer idealen Linse und dem Lichtfeld in einer beliebigen parallelen Ebene (1) auf der gegenüberliegenden Seite lässt sich als eine Fouriertransformation beschreiben - abgesehen von einer Phasenfunktion als Faktor. In dem vorliegenden Experiment bezieht sich dies auf die Brennebene (2) in Abbildung 5.9 und die Ebene durch den Tropfenmittelpunkt (1), hier Objektebene genannt. Das bedeutet gemäß den Eigenschaften einer zweidimensionalen Fouriertransformation, dass man jedes periodische Streifenmuster (2) in der Brennebene dann Punkten in der Objektebene (1) zuordnen kann. Diese Punkte in der Objektebene werden Glanzpunkte genannt und können in Ab-

bildung 5.2 einem bestimmten Strahlengang durch den Tropfen zugeordnet werden, falls der Tropfen gegenüber der Lichtwellenlänge groß genug ist.<sup>1</sup>

Bei genauem Hinsehen erkennt man zum Beispiel, dass das Streubild in Abbildung 5.5 in der Nähe von  $\phi = 35^\circ$  und  $\theta = 0^\circ$  ein Muster aus nahezu vertikalen Streifen enthält, die dem eines homogenen Tropfens in Abbildung 5.8 ähneln. Die Glanzpunkte, die hauptsächlich für dieses Streubild verantwortlich sind, werden in Abbildung 5.2 gezeigt. In dem hier vorliegenden Bereich von Streuwinkeln, Blasengrößen und -positionen liegen zwei dieser drei Glanzpunkte in der Äquatorebene ( $z = 0$ ) des Tropfens und werden von der Blase nicht beeinflusst. Das ist der Grund, warum das zugehörige vertikale Streifenmuster in diesem Fall bei Tropfen mit und ohne Blase auftritt. Im Abschnitt 5.5 wird auf Glanzpunkte noch näher eingegangen.

In gleicher Weise kann begründet werden, dass man, wie bei einem homogenen Tropfen gleicher Größe, bei  $\phi = 140,15^\circ$  ein Intensitätsmaximum findet, das als erster Regenbogen bekannt ist (siehe Abbildung 5.7). Der zweite Regenbogen bei theoretisch  $\phi = 125,35^\circ$  ist weniger deutlich zu erkennen.

Borghese et al. berechnen den hier vorliegenden Fall einer dielektrischen Kugel mit einem kugelförmigen Hohlraum [3]. Ein direkter Vergleich ist hier jedoch nicht möglich, da dort für den Tropfen ein anderer Brechungsindex angenommen wird und ein um etwa Faktor 70 kleinerer Radius. Borghese et al. führen die Berechnungen für einen Größenparameter von  $X = 2\pi R/\lambda = 4.341$  durch, weil in diesem Bereich die Näherung der geometrischen Optik nicht mehr sinnvoll anwendbar ist, hier ist  $R$  der Tropfenradius und  $\lambda$  die Wellenlänge. Für einen Tropfen mit  $52\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser (siehe Abbildung 5.10) und eine Wellenlänge von  $532\text{ nm}$  ist der Größenparameter höher und beträgt  $X = 307$ . In diesem Bereich lässt sich die geometrische Optik (Strahlenoptik) bis zu einem gewissen Grad anwenden, der es erlaubt, die Blasengröße und Position in Abschnitt 5.5 zu bestimmen. Trotzdem ist zu erwarten, dass der Unterschied zwischen geometrischer Optik und Wellenoptik ausreichend groß ist, um anhand dieser experimentellen Daten die Theorie von Borghese et al. zu beurteilen. Um eine Abschätzung für die Größe dieser Abweichungen zu bekommen, kann man den Winkel des ersten Regenbogens heranziehen. Er beträgt nach der geometrischen Optik  $137,9^\circ$  und nach der Airy-Theory  $140,2^\circ$ . Dieser Unterschied lässt sich in Abbildung 5.7 deutlich auflösen. Die Durchführung der theoretischen Berechnungen geht jedoch über den Rahmen dieser Arbeit hinaus.

Im Experiment war die Untersuchung des Größenparameters einge-

---

<sup>1</sup>Dass die CCD-Kamera nur die Amplitude des Lichtfelds misst, während sich die Fouriertransformation auf Phase und Amplitude bezieht, führt dazu, dass man bei der numerischen Rücktransformation von Abbildung 5.5 statt weniger Punkte eigentlich ein periodisches Gitter von Punkten erhält. Das beeinflusst jedoch die Messungen hier nicht.

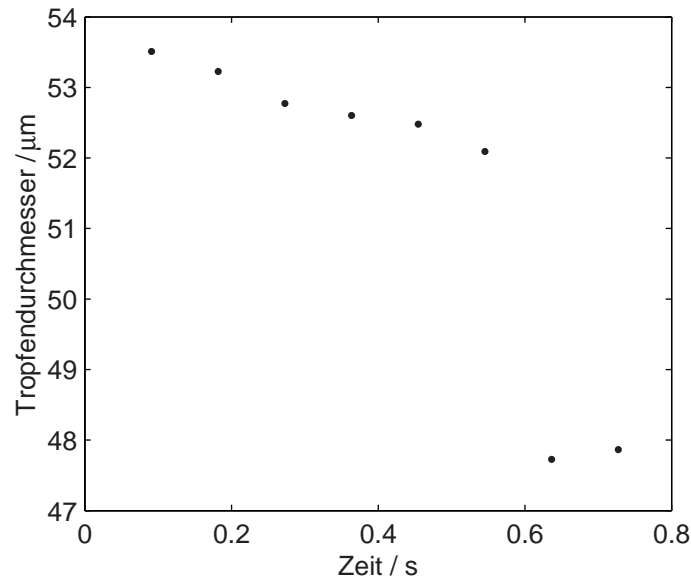


Abbildung 5.10: Gemessener Tropfendurchmesser als Funktion der Zeit, ermittelt aus Abbildung 5.11 nach Glantschnig und Chen [39]

schränkt, da nur Laserquellen im sichtbaren Bereich zur Verfügung standen und sich die Größe der Tropfen aus dem Druckkopf nur innerhalb einiger Mikrometer verändern lässt. Um Tropfen mit einem Größenparameter um 1 zu realisieren, müssen daher andere Methoden zur Erzeugung der Tropfen oder eine Laserquelle im fernen Infrarot in Betracht gezogen werden.

## 5.5 Zeitaufgelöste Vermessung des Tropfens anhand des Fernfelds der Lichtstreuung

In diesem Abschnitt wird vorgestellt, wie anhand des gestreuten Lichts im Fernfeld der Durchmesser und die Position einer Luftblase in einem Tropfen präzise bis auf  $\pm 1,5 \mu\text{m}$  bestimmt wurde. Damit vermesse ich zum ersten Mal die vollständige Geometrie von Tropfen mit weniger als  $100 \mu\text{m}$  Durchmesser und einem Einschluss durch Auswertung des Streulichts im Fernfeld. Sie bietet gegenüber der direkten Beobachtung im Abschnitt 5.2 den Vorteil, unabhängig von der Position des Tropfens zu sein. Da die Interferenzstreifen in Abbildung 5.11 sich schon mit bloßem Auge bereits gut erkennen lassen, wurden ihre Winkel zueinander ausgewertet.

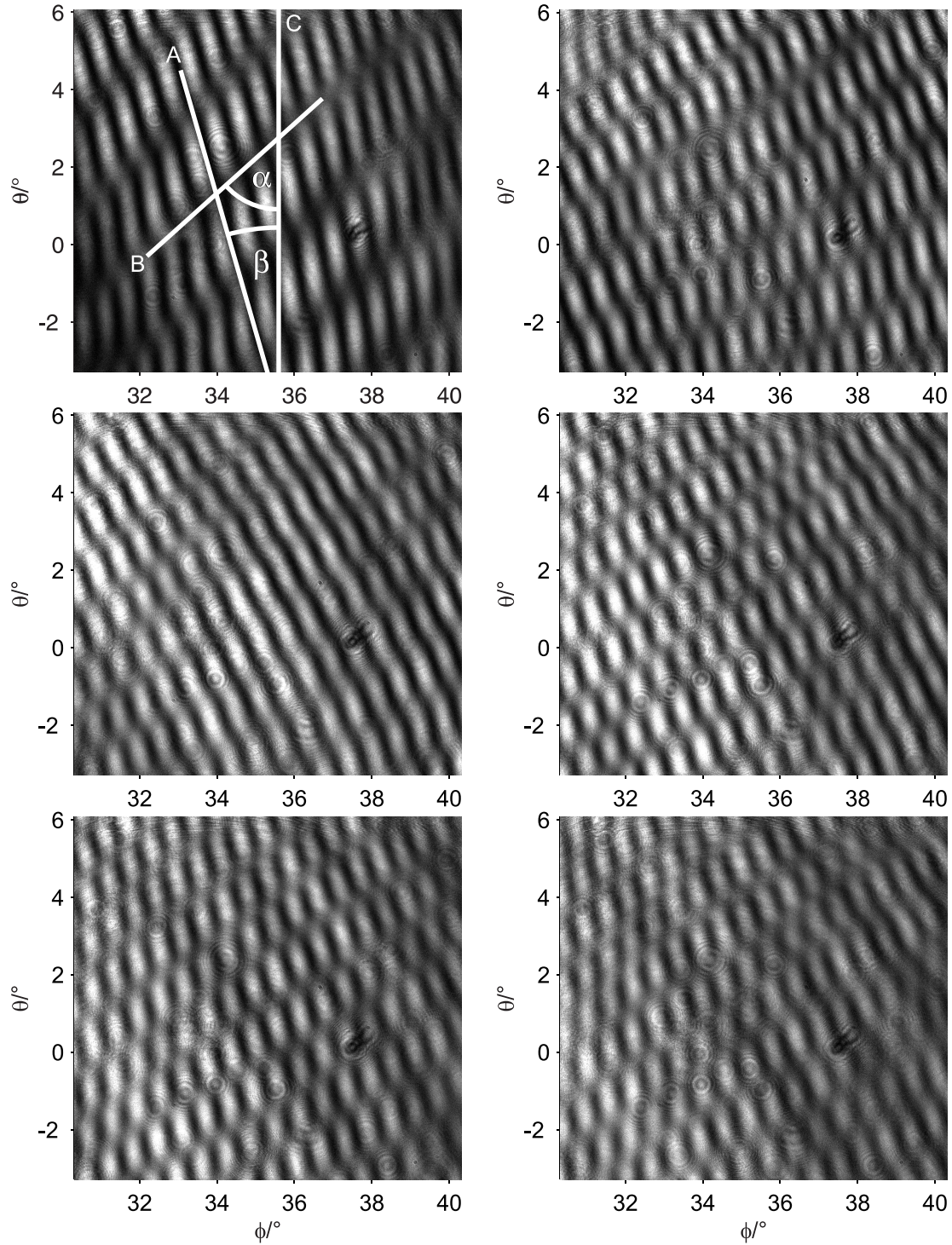


Abbildung 5.11: Lichtstreuung an einem Wassertropfen mit Lufteinschluss, gestreute Intensität in Abhängigkeit vom Winkel  $\phi$  in der waagerechten Ebene ( $0^\circ$  = Vorwärtsstreuung) und vom Winkel  $\theta$  gemessen zur waagerechten Ebene. Die Belichtungszeit beträgt  $500 \mu\text{s}$ . Zwischen den Aufnahmen liegen 91 ms Zeit. Wellenlänge 523 nm, Polarisation gegenüber der Horizontalen (Ebene Laserstrahl-Detektor) um  $45^\circ$  gegen den Uhrzeigersinn gedreht (Blick in Strahlrichtung).

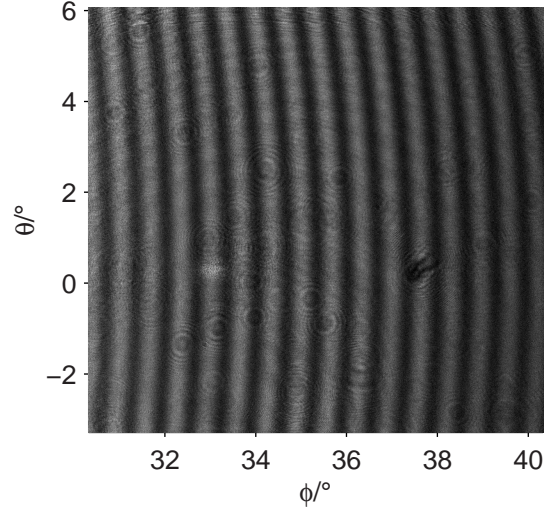


Abbildung 5.12: Aufnahme unter gleichen Bedingungen und an demselben Tropfen wie in Abbildung 5.11 jedoch 182 ms später. Inzwischen hat der Lufteinschluss den Tropfen verlassen.

Die Aufnahmen des Fernfelds der Lichtstreuung in Abbildung 5.11 zeigen den gleichen Winkelbereich zu verschiedenen Zeitpunkten. Zwischen den Aufnahmen liegen 91 ms, sie sind alle an demselben Tropfen aufgenommen und in Leserichtung angeordnet. Der Versuchsaufbau ist der gleiche wie im Abschnitt 5.4. Man erkennt in den Aufnahmen die Überlagerung verschiedener Streifenmuster, deren Periode und Winkel zueinander sich mit der Zeit ändern. Abbildung 5.12 zeigt eine Aufnahme, nachdem die Blase den Tropfen verlassen hat. Dieses Muster lässt sich auch in allen anderen Aufnahmen wiedererkennen, es ist das Muster eines homogenen Tropfens, das in Abbildung 5.8 gezeigt wird. Deshalb wurde zur Größenbestimmung des Tropfens das gleiche Verfahren angewendet wie in Abschnitt 3.2.4: Die Periode des Streifenmusters und der mittlere Winkel  $\phi$  wird in die Formel von Glantschnig und Chen [39] eingesetzt, die auf geometrischer Optik basiert. Diese Auswertung lässt sich dadurch rechtfertigen, daß dieses Streifenmuster durch Glanzpunkte in der Äquatorebene entsteht, die nur in einem kleinen Bereich die Blase schneidet.

Das Ergebnis ist in Abbildung 5.10 gezeigt: Der Tropfendurchmesser nimmt innerhalb einer halben Sekunde von  $53,5 \mu\text{m}$  um  $1,5 \mu\text{m}$  ab und reduziert sich sprunghaft auf  $48 \mu\text{m}$ . Dieses Verhalten entsteht durch die Verdunstung des Tropfens in die nicht mit Wasserdampf gesättigte Umgebung und durch das plötzliche Ausstoßen der Blase aus dem Tropfen. Aus der



sprungartigen Volumenänderung lässt sich eine untere Grenze für den Blasendurchmesser von  $(32 \pm 1) \mu\text{m}$  angeben. Während die Blase den Tropfen verlässt, konnte kein zusätzlicher Verlust von Flüssigkeit in Form kleinerer Tropfen beobachtet werden. Deshalb wird der angegebene Blasendurchmesser nicht nur als untere Grenze sondern als tatsächlicher Wert angenommen und zur Überprüfung der folgenden Messtechnik benutzt.

Wie bereits im vorigen Abschnitt erläutert, lassen sich jedem Streifenmuster in Abbildung 5.11 Glanzpunkte auf dem Tropfen zuordnen. Dies geht aus den Eigenschaften der zweidimensionalen Fouriertransformation hervor, die mathematisch den Zusammenhang zwischen den Lichtfeldern in den Brennebenen einer idealen Linse darstellt. Die Tatsache, dass in diesem Experiment zwar der CCD-Chip in einer Brennebene (siehe Abbildung 5.9) liegt, nicht aber der Tropfen, führt nur zu einer zusätzlichen Phasenfunktion als Faktor, der sich hier nicht bemerkbar macht, da der CCD-Chip nur Intensitäten aber keine Phasen aufzeichnet. Ebenso kann man mit den Eigenschaften der Fouriertransformation begründen, dass sich die Winkel zwischen den Mustern paralleler Streifen zwischen den Glanzpunkten wiederfinden lassen.

Die Streubilder in Abbildung 5.11 können im Wesentlichen durch die drei Glanzpunkte in Abbildung 5.2 erklärt werden: Wie man im rechten unteren Diagramm sieht, entsteht der Glanzpunkt nullter Ordnung durch Reflexion (+) an der Tropfenaußenfläche. Der Glanzpunkt erster Ordnung entsteht durch zweimalige Brechung ( $\times$ ) an der Tropfenoberfläche. Im gezeigten Fall liegen diese beiden Glanzpunkte und ihre Strahlengänge in der Äquatorebene und wechselwirken nicht mit der Blase. Deshalb treten sie in homogenen Tropfen an den gleichen Stellen auf. Der Glanzpunkt 2. Ordnung entsteht durch zweimalige Brechung an der Tropfenaußenfläche und einer Reflexion dazwischen an der Innenfläche zur Blase. Dadurch hängt dieser Glanzpunkt von Größe und Position der Blase ab.

Um diese Eigenschaften für ein Messverfahren zu nutzen, wurde die Berechnung der Position dieses Glanzpunkts für verschiedene Radien  $r$  der Blase und Abstände zwischen den Oberflächen  $a$  wiederholt und als Gitternetz in Abbildung 5.13 gezeichnet. Eine vergrößerte Darstellung davon mit Zahlenwerten ist in Abbildung 5.14 zu sehen. Die Winkel  $\alpha$  und  $\beta$ , die sich zwischen den Verbindungslinien der Glanzpunkte ergeben, finden sich wie erwähnt gemäß der Eigenschaften der Fouriertransformation auch im Streubild in Abbildung 5.11 wieder. Zum Beispiel erzeugt die Interferenz der Glanzpunkte 1. und 2. Ordnung die zur Verbindungslinie senkrechten Streifen (B) in Abbildung 5.11 von links unten nach rechts oben.

Das Messverfahren für die Bestimmung von Blasenradius  $R_B$  und Oberflächenabstand  $a$  beruht auf der Annahme, dass sich der Tropfen zum Zeitpunkt der Messung durch die Schwerkraft so orientiert hat, dass die Blase

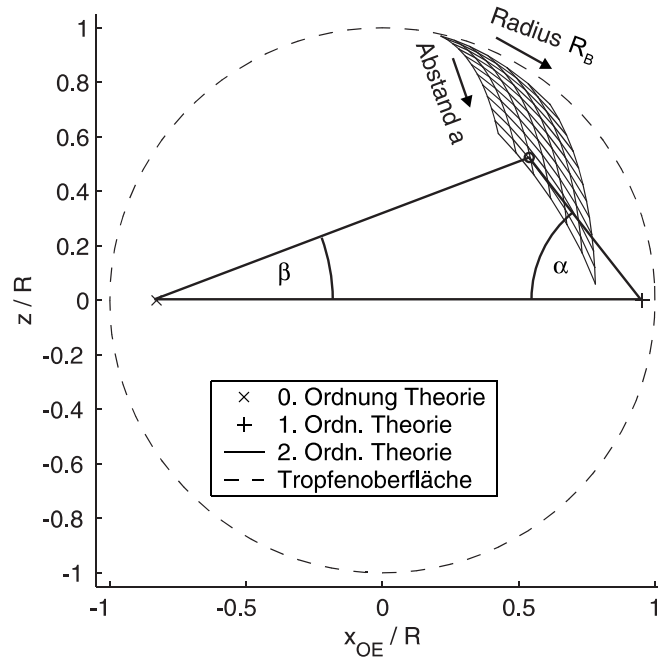


Abbildung 5.13: Glanzpunkte in der Objektebene für die Beobachtungsrichtung  $\phi = 35^\circ$ ,  $\theta = 0$  für eine Kugel mit Brechungsindex 1,333 und beliebigem Radius  $R$  und einem kugelförmigen Loch mit Radius  $0,4R \leq R_B \leq 0,7R$  und einem Abstand  $0 \leq a \leq 0,25R$ . Die Glanzpunkte 0. Ordnung ( $\times$ ) und 1. Ordnung ( $+$ ) hängen hier nicht von  $a$  und  $R_B$  ab. Die Abhängigkeit der Position der Glanzpunkt 2. Ordnung von  $a$  und  $R_B$  ist als Gitternetz dargestellt. Die Winkel  $\alpha$  und  $\beta$  sind beispielhaft für einen festen Parameter dargestellt.

in horizontaler Richtung im Tropfen zentriert ist. Diese Annahme ist sinnvoll, weil sich die elektrischen Ladungen durch gegenseitige Abstoßung in der Oberfläche verteilen und dadurch die Kräfte auf einen Tropfen im Fallenzentrum zeitlich gemittelt symmetrisch zur vertikalen Achse sind. Dadurch wirkt solange ein Drehmoment auf den Tropfen, bis der Schwerpunkt auf einer vertikalen Linie unter dem Mittelpunkt liegt.

Das Messverfahren besteht darin, das Streubild wie in Abbildung 5.11 aufzunehmen, die beiden Winkel  $\alpha$  und  $\beta$  zu bestimmen und durch Vergleich mit den theoretisch berechneten Winkeln oder den Positionen der Glanzpunkte  $r$  und  $a$  zu bestimmen. In Abbildung 5.14 wurden die aus den experimentellen Daten berechneten Glanzpunkte eingetragen. Jeder Punkt von unten nach oben entspricht einer Streubildaufnahme in Abbildung 5.11 in Leserichtung. Aus dieser Abbildung erhält man Radius und Abstand der Blase als Funktion der Zeit durch Ablesen im krummlinigen Koordinatensystem  $R_B$  und  $a$ .

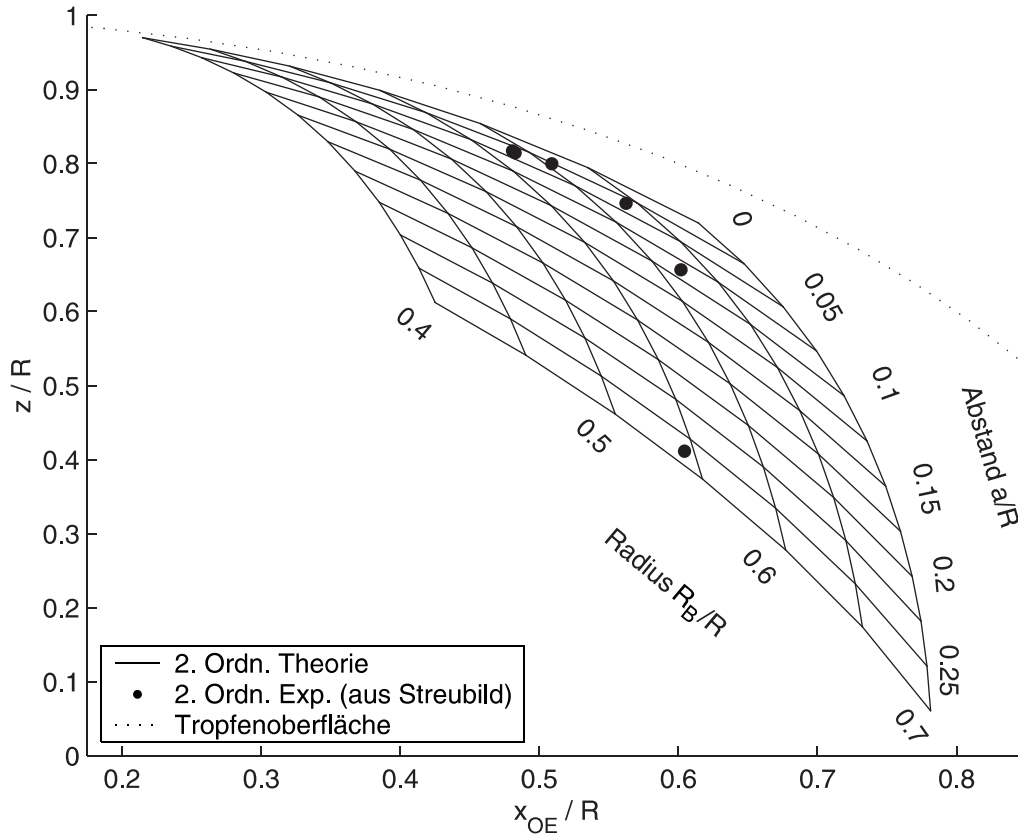


Abbildung 5.14: Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 5.13 mit den aus experimentellen Streubildern ermittelten Glanzpunkten.

Die beiden Größen sind in Abbildung 5.15 und 5.16 mit Fehlerbalken dargestellt, die auf einem Fehler von  $\pm 1^\circ$  bei der Winkelbestimmung in Abbildung 5.11 beruhen. In Abbildung 5.15 ist zusätzlich in Form dreier Linien der Blasendurchmesser mit Messunsicherheit eingetragen, der aus der Volumenänderung des Tropfens beim Verlassen der Blase berechnet wurde. Die Messwerte liegen gleichmäßig um diesen Durchmesser verteilt und stimmen bis auf den ersten im Rahmen der Fehlerbalken gut überein. Das bedeutet, die Größe der Blase ändert sich wie zu erwarten mit der Zeit nicht. Die Abweichung von 9% beim ersten Messwert entsteht möglicherweise dadurch, dass sich die Mittelpunkte noch nicht ausreichend nach der Schwerkraft ausgerichtet haben und die Blase nicht genau auf der  $z$ -Achse liegt. Die Übereinstimmung der späteren Werte zeigt, dass die Messtechnik hier erfolgreich angewendet wurde und für den Blasendurchmesser korrekte Werte liefert.

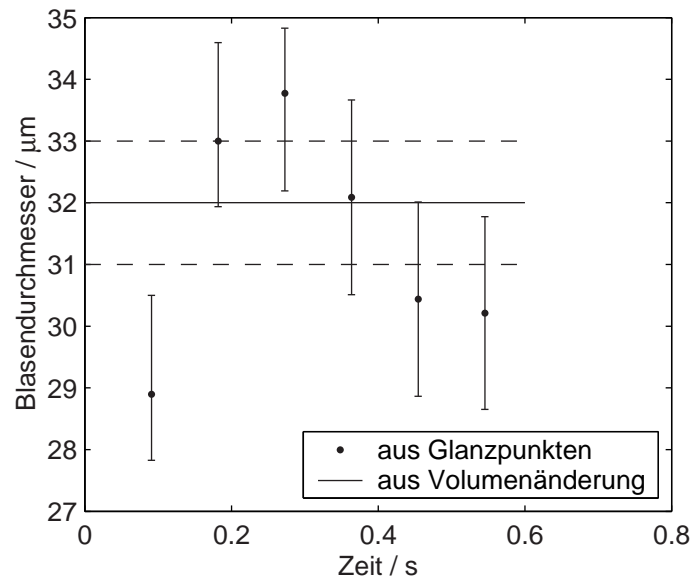


Abbildung 5.15: Gemessener Blasendurchmesser als Funktion der Zeit, abgelesen aus Abbildung 5.14. Die Fehlerbalken gelten für eine Messunsicherheit der Winkel von  $\pm 1^\circ$  in Abbildung 5.11.

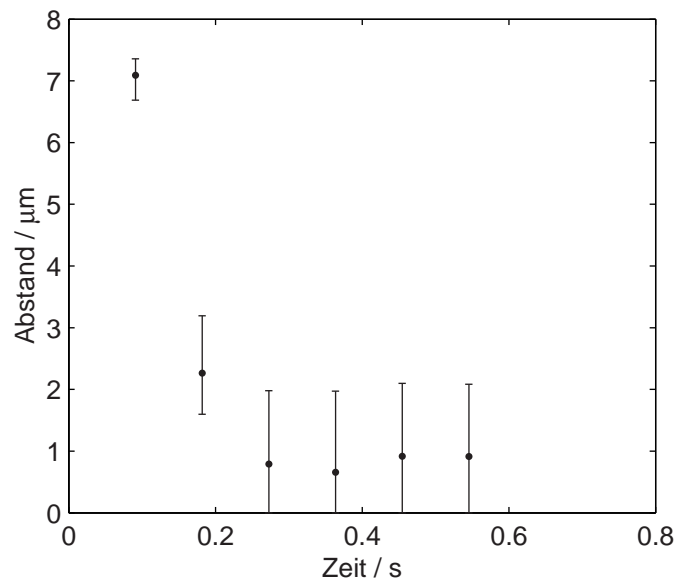


Abbildung 5.16: Gemessener Abstand der Außenfläche des Tropfen und der Blasenoberfläche als Funktion der Zeit, abgelesen aus Abbildung 5.14. Die Fehlerbalken gelten für eine Messunsicherheit der Winkel von  $\pm 1^\circ$  in Abbildung 5.11.

Abbildung 5.16 zeigt den Abstand  $a$  zwischen den Oberflächen von Blase und Tropfen auf der  $z$ -Achse zu den gleichen Zeitpunkten. Die ersten beiden Werte zeigen, dass sich die Blase innerhalb des Tropfens nach oben bewegt. Dies ist wegen des Auftriebs durch die Schwerkraft physikalisch zu erklären. Die darauffolgenden Messwerte liegen bei weniger als  $1\text{ }\mu\text{m}$  und damit innerhalb der Messunsicherheit. Die Abstandsänderung ist ab dem dritten Messwert wesentlich geringer als davor. Das zeigt, dass relativ lange ein dünner Flüssigkeitsfilm von weniger als  $1\text{ }\mu\text{m}$  über der Blase besteht, bevor er reißt und die Blase den Tropfen verlässt.

Indem eine Messtechnik basierend auf der Analyse des Fernfelds des Streulichts zum ersten Mal erfolgreich auf Tropfen von weniger als  $100\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser mit einer einzelnen Blase angewendet wurde, konnten Durchmesser und der Abstand des Tropfens und der eingeschlossenen Blase auf  $\pm 1,5\text{ }\mu\text{m}$  präzise gemessen werden. Aus der zeitlichen Veränderung des Signals können interessante Informationen über die Dynamik der Bewegung gewonnen werden. Im Vergleich zu einer Analyse der direkten Abbildung entstehen keine Unsicherheiten bei der Festlegung des Tropfenrands, der je nach Beleuchtung verschieden erscheint. Vor allem werden die Messungen im Fernfeld nicht beeinträchtigt, wenn der Tropfen sich bewegt und außerhalb der Objektebene nicht scharf abgebildet wird.

## 5.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zum ersten Mal experimentelle Ergebnisse der Lichtstreuung von Tropfen von weniger als  $100\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser mit einem nicht-zentrierten kugelförmigen Einschluss vorgestellt. Mit Hilfe der neu entwickelten Fallengeometrie mit erweitertem optischen Zugang wurde das Fernfeld des Streulichts über einen Winkelbereich von  $\phi$  über  $120^\circ$  gemessen, um experimentelle Daten zur Verifikation und Weiterentwicklung von Theorien zu bieten. Außerdem wurde erfolgreich ein Messverfahren angewendet, um aus dem Streulicht im Fernfeld zeitabhängig die Größen und den Abstand von Tropfen und Einschluss bis auf  $\pm 1,5\text{ }\mu\text{m}$  zu bestimmen. Schließlich wurden Glanzpunkte aufgenommen, von denen die meisten Strahlengänge im Tropfen zugeordnet werden konnten. Weiterführende wellenoptische Berechnungen sind sinnvoll, um vorhandene Abweichungen zu erklären. Die hier gezeigten Arbeiten liefern einen wichtigen Beitrag zur Überprüfung und Weiterentwicklung von Theorien zur Lichtstreuung und schließlich zur Weiterentwicklung optischer Messtechniken für Partikel und Tropfen, die für die Optimierung und das Verständnis technischer und natürlicher Prozesse unverzichtbar sind.

# Kapitel 6

## Sherwood- und Nusselt-Zahl von Tropfen bei Reynolds-Zahlen um eins

*Tropfen bestimmen als Bestandteile von Sprays und Aerosolen sowohl natürliche als auch technische Vorgänge: in Wolken, in Motoren, in der Landwirtschaft und bei der Trocknung von chemischen oder pharmazeutischen Produkten oder von Lebensmitteln. Um diese Prozesse optimieren zu können, sind präzise Kenntnisse über die Verdampfungsvorgänge nötig. Allerdings weichen die bisher bei Reynolds-Zahlen um 1 gemessenen Sherwood- und Nusselt-Zahlen für den Stoff- und Wärmetransport deutlich voneinander ab oder sie sind mit großen Messunsicherheiten verbunden [9, 10, 12, 13, 14]. Im Rahmen meiner Arbeit konnte ich diese Kennzahlen genauer bestimmen. Die neuen Ergebnisse zeichnet aus, dass im Gegensatz zu früheren Arbeiten mehr als 700 einzelne Tropfen berührungslos untersucht wurden. Dazu hat die von mir weiterentwickelte elektrodynamische Falle beigetragen.*

*Hier wurden speziell Wassertropfen vermessen, weil sie in der Atmosphäre dominieren und weil Wasser für die Sprühtrocknung und im Pflanzenschutz ein wichtiges Lösungsmittel ist. Reynolds-Zahlen um 1 wurden gewählt, weil sie in diesen Anwendungen häufig auftreten. Zum Beispiel wird die Reynolds-Zahl 1 von der Luftströmung um einen frei fallenden Wassertropfen mit 80  $\mu\text{m}$  Durchmesser bei der Endgeschwindigkeit von 0,17 m/s erreicht (Luft bei 5° C und 10<sup>5</sup> Pa).*

*In Abschnitt 6.1 wird für den Stoff- und Wärmetransport in einem Fluid zunächst das Konzept der Reynolds-, Sherwood- und Nusselt-Zahl erläutert und ein Modell vorgestellt, das für die Beschreibung des Experiments geeignet ist. Darauf folgt ein Überblick über den Stand der Forschung in Abschnitt 6.2. In Abschnitt 6.3 wird gezeigt, wie aus experimentell messbaren Größen die*

*Sherwood-Zahl berechnet wird, während in Abschnitt 6.4 die Durchführung des Experiments beschrieben wird und die in dieser Arbeit erreichten Versuchsergebnisse den früheren Untersuchungen gegenübergestellt werden. Dabei zeigt sich, dass die in der vorliegenden Arbeit erreichte Messunsicherheit von 0,015 für die Sherwood-Zahl geringer ist als bei den bisher bekannten Untersuchungen. Im letzten Abschnitt werden alle wichtigen verwendeten Annahmen und Näherungen begründet.*

## 6.1 Modellierung des Stoff- und Wärmetransports

In diesem Abschnitt werden die verwendeten Definitionen von Reynolds-, Sherwood- und Nusselt-Zahl angegeben. Anschließend wird ein Modell für den Stoff- und Wärmetransport definiert, welches zur Beschreibung der Tropfenverdampfung im Experiment geeignet ist, das im Abschnitt 6.4 beschrieben wird. Es wird gezeigt, dass unter den Modellannahmen die Sherwood- und die Nusselt-Zahl nur von der Reynolds-Zahl  $Re$  und der Schmidt-Zahl  $Sc$  bzw. der Prandtl-Zahl  $Pr$ , von der Definition der charakteristischen Größen und den Randbedingungen abhängen.

Die Reynolds-Zahl ist eine dimensionslose Kennzahl der Strömungsmechanik. Sie wird aus einer für das Strömungsproblem charakteristischen Geschwindigkeit  $v$ , einer charakteristischen Länge  $L$  und der kinematischen Viskosität  $\nu$  gebildet:

$$Re = \frac{v L}{\nu} \quad (6.1)$$

Sie ist ein Maß für den Einfluss der typischen Reibungskräfte im Vergleich zu den typischen Trägheitskräften.

Die örtliche Sherwood-Zahl ist eine dimensionslose Größe für den Stofftransport durch Diffusion an einem Punkt durch eine Oberfläche in einem Fluid. Das Lehrbuch von Baehr und Stephan [41] gibt dafür die Gleichung  $Sh = \beta L / D$  mit dem örtlichen Stoffübergangskoeffizienten  $\beta = \vec{j}_{AS}^* \cdot \vec{e}_n / \Delta c_A$  an, wobei alle Symbole im Anhang A erklärt sind. Andere Autoren wie Woo und Hamielec [8] definieren die Sherwood-Zahl über Massen anstelle von Stoffmengen. Die entsprechende Definition, die im Folgenden verwendet wird, lautet

$$Sh = \frac{\vec{j}_{AS} \cdot \vec{e}_n L}{D \Delta \rho_A}, \quad (6.2)$$

wobei  $L$  eine charakteristische Länge,  $D$  ein Diffusionskoeffizient und  $\Delta \rho_A$  ein charakteristischer Massendichte-Unterschied ist, während  $\vec{j}_{AS} \cdot \vec{e}_n$  eine

Massenstromdichte senkrecht zu einem Flächenelement und relativ zur Geschwindigkeit  $\vec{v} = (\rho_A \vec{v}_A + \rho_B \vec{v}_B)/\rho$  des Massenmittelpunkts angibt.

Für den Wärmetransport durch Wärmeleitung an einem Punkt durch eine Oberfläche in einem Fluid wird analog die örtliche Nusselt-Zahl

$$Nu = \frac{\vec{q}_S \cdot \vec{e}_n L}{k \Delta T} \quad (6.3)$$

definiert, wobei  $\vec{q}_S \cdot \vec{e}_n$  die Wärmestromdichte durch Wärmeleitung an dem gewählten Punkt der Oberfläche,  $\Delta T$  ein charakteristischer Temperaturunterschied und  $k$  eine Wärmeleitfähigkeit ist.

Die über eine Fläche  $A_0$  gemittelte Sherwood-Zahl  $Sh_m$  und Nusselt-Zahl  $Nu_m$  lautet

$$Sh_m = \frac{(\int_{A_0} \vec{j}_{AS} \cdot \vec{e}_n dA) L}{A_0 D \Delta \rho_A}, \quad (6.4)$$

$$Nu_m = \frac{(\int_{A_0} \vec{q}_S \cdot \vec{e}_n dA) L}{A_0 k \Delta T}. \quad (6.5)$$

Dabei können zur Angabe des charakteristischen Dichteunterschieds zwei verschiedene beliebige aber in dimensionslosen Koordinaten  $\vec{x}/L$  feste Punkte  $\vec{x}$  gewählt werden.

Wenn in einem Modell die folgenden Bedingungen erfüllt sind, dann ist die Sherwood-Zahl und die Nusselt-Zahl nach Gleichung 6.2 und 6.3 bei fester Reynolds-Zahl und festen Verhältnissen  $\eta/(\rho D)$  und  $\eta/(\rho a)$  unabhängig vom Diffusionskoeffizienten  $D$ , von der charakteristischen Länge  $L$ , von der Differenz der Massendichten  $\Delta \rho_A$  und der Temperaturdifferenz  $\Delta T$ :

1. Das Fluid besteht aus zwei Stoffen A und B.
2. Seine Massendichte  $\rho = \rho_A + \rho_B$  ist konstant.
3. Das Geschwindigkeitsfeld  $\vec{v}$  und das Druckfeld  $p$  wird durch

$$\operatorname{div} \vec{v} = 0 \quad (6.6)$$

und

$$\rho (\vec{v} \cdot \operatorname{grad}) \vec{v} = -\operatorname{grad} p + \eta \operatorname{div} \operatorname{grad} \vec{v} \quad (6.7)$$

bestimmt, wobei  $\eta$  eine konstante dynamische Viskosität und  $\operatorname{div} \operatorname{grad}$  der Laplace-Operator ist.

4. Das Temperaturfeld  $T$  wird durch

$$\rho c_p \vec{v} \cdot \operatorname{grad} T = k \operatorname{div} \operatorname{grad} T \quad (6.8)$$



bestimmt, wobei  $c_p$  eine konstante Wärmekapazität,  $k$  eine konstante Wärmeleitfähigkeit und  $\vec{q}_S = -k \text{ grad } T$  der Wärmestromvektor gemäß Fourier'scher Wärmeleitung ist.

5. Das Massendichtefeld  $\rho_A$  des Stoffes A wird durch

$$\vec{v} \cdot \text{grad } \rho_A = D \text{ div grad } \rho_A \quad (6.9)$$

bestimmt, wobei  $D$  ein konstanter Diffusionskoeffizient ist. Dies beinhaltet das Fick'sche Diffusionsgesetz  $\vec{J}_{AS}^* = -D \text{ grad } c_{AS}$ , das auch  $\vec{J}_{AS} = -D \text{ grad } \rho_{AS}$  geschrieben werden kann.

6. An den Rändern des Fluids werden die Werte von  $\vec{v}$  vorgegeben.  $T$  und  $\rho_A$  haben auf einem Teil des Randes den konstanten Wert  $T_S$  bzw.  $\rho_{AS}$ , auf dem übrigen Teil des Randes den konstanten Wert  $T_\infty$  bzw.  $\rho_{A\infty}$ .

Definiert man die charakteristischen Differenzen  $\Delta T$  und  $\Delta \rho_A$  über Werte auf dem Rand und entdimensioniert die Gleichungen mit den im Anhang A erklärten dimensionslosen Variablen erhält man

$$\text{div } \hat{\vec{v}} = 0, \quad (6.10)$$

$$Re \hat{\vec{v}} \cdot \text{grad } \hat{\vec{v}} = -(Re/2) \text{ grad } \hat{p} + \text{div grad } \hat{\vec{v}}, \quad (6.11)$$

$$Re Sc \hat{\vec{v}} \cdot \text{grad } \hat{\rho}_A - \text{div grad } \hat{\rho}_A = 0, \quad (6.12)$$

$$Re Pr \hat{\vec{v}} \cdot \text{grad } \hat{T} - \text{div grad } \hat{T} = 0, \quad (6.13)$$

wobei  $Re Sc = v_\infty L/D$  und  $Re Pr = v_\infty L/a$  mit  $a = k/(c_p \rho)$  ist. Als Randbedingung erhält man auf einem Teil des Randes  $\hat{\rho}_A = 1$  und  $\hat{T} = 1$ , auf dem anderen Teil  $\hat{\rho}_A = 0$  und  $\hat{T} = 0$ . Die Gleichungen 6.10 und 6.11 zeigen, dass die Lösungen für die Felder  $\hat{\vec{v}}$  und  $\hat{p}$  allein durch die Reynolds-Zahl  $Re$  und die Randbedingungen für  $\vec{v}$  festgelegt sind. Die Felder  $\hat{\rho}_A$  und  $\hat{T}$  hängen von  $Re Sc$  bzw.  $Re Pr$ , von dem Feld  $\hat{\vec{v}}$  und von der Geometrie des Randes ab. Alle dimensionslosen Felder hängen natürlich auch davon ab, wie die charakteristischen Größen definiert wurden. Setzt man das Fick'sche Diffusionsgesetz in die Definition der lokalen Sherwood-Zahl ein, erhält man mit dimensionslosen Größen

$$Sh = (\text{grad } \hat{\rho}_A)_S \vec{e}_n, \quad (6.14)$$

Analog findet man mit dem Fourier'schen Gesetz der Wärmeleitung für die lokale Nusselt-Zahl an der Oberfläche

$$Nu = (\text{grad } \hat{T}_A)_S \vec{e}_n. \quad (6.15)$$

Diese beiden Gleichungen zeigen, dass in dem angegebenen Modell die Sherwood-Zahl  $Sh$  nur von der Reynolds-Zahl  $Re$ , von der Schmidt-Zahl  $Sc = \eta/(\rho D)$ , von der Form der Ränder, von der Geschwindigkeit  $\vec{v}$  an den Rändern und von der Weise, wie die charakteristische Länge definiert wurden, abhängt:

$$Sh = f(Re, Sc) \quad (6.16)$$

Eine analoge Aussage gilt für die Nusselt-Zahl  $Nu$  unter Verwendung der Prandtl-Zahl  $Pr = \eta/(\rho a)$  :

$$Nu = f(Re, Pr), \quad (6.17)$$

Da die Gleichungen 6.13 und 6.12 die gleiche Form haben, ist auch die Funktion  $f$  in beiden Fällen identisch.

Bei hinreichend kleinen Reynolds-Zahlen  $Re$  kann in Gleichung 6.11 die linke Seite, die die Trägheitskräfte repräsentiert, vernachlässigt werden. Mit dieser Näherung, die Stokes'sche Näherung genannt wird, erhält man eine schleichende Strömung, bei der die Lösung  $\vec{v}$  nicht mehr von der Reynolds-Zahl abhängt. Dann lässt sich  $Sh$  als Funktion des Produkts  $Re Sc$  schreiben:

$$Sh = g(Re Sc). \quad (6.18)$$

$$Nu = g(Re Pr). \quad (6.19)$$

Diese beiden Gleichungen werden, wie im Abschnitt 6.3 dargestellt, für die Berechnung der Temperatur eines parallel angeströmten verdampfenden Tropfens verwendet, da in den Experimenten dieser Arbeit  $Sc \approx Pr$  ist. Die Experimente zur Bestimmung der Sherwood-Zahl werden in Abschnitt 6.4 beschrieben.

## 6.2 Bekannte Untersuchungen der Sherwood-Zahl von Kugeln bei kleinen Reynolds-Zahlen

In diesem Abschnitt werden die eigenen Tropfenuntersuchungen hinsichtlich der phänomenologisch verschiedenen Bereiche der Reynolds-Zahl, hinsichtlich bekannter theoretischer Berechnungen des Strömungsfelds und hinsichtlich bisheriger theoretischer und experimenteller Untersuchungen des Wärme- und Stofftransports eingeordnet.

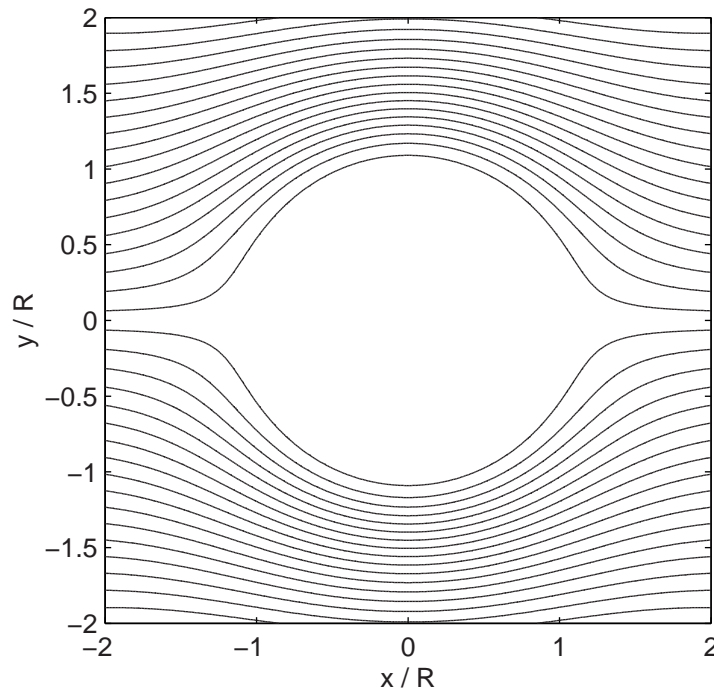


Abbildung 6.1: Stromlinien einer schleichende Strömung nach Stokes um eine Kugel mit dem Radius  $R$  [42].

Die Strömung um eine feste Kugel sieht wie von Clift et al. [42] beschrieben wie folgt aus: Für Reynolds-Zahlen  $Re \ll 1$  ist die Strömung stationär und kann als schleichende Strömung nach Stokes [43] beschrieben werden. Man spricht von schleichender Strömung, wenn alle Trägheitskräfte gegenüber den Reibungskräften vernachlässigt werden können. Diese Strömung ist laminar und in Abbildung 6.1 durch Stromlinien dargestellt. Die Form der Stromlinien ist unabhängig von der Geschwindigkeit fern von der Kugel und von der Viskosität. Bei Reynolds-Zahlen über etwa 20 bildet sich hinter der Kugel ein stationärer Wirbelring, das heißt, die Strömung löst sich teilweise ab. Mit weiter steigenden Reynolds-Zahlen wächst der Wirbel und ab etwa  $Re=400$  lösen sich periodisch Wirbel ab. Bei Reynolds-Zahlen über  $3,5 \cdot 10^5$  wird die Strömung turbulent.

Die vorliegende Arbeit untersucht Tropfen und beschränkt sich auf den Bereich um  $Re = 1$ . Dieser Bereich ist besonders interessant, da er typisch für kleine Wassertropfen in der Atmosphäre ist: Zum Beispiel beträgt die Reynolds-Zahl eins für frei fallende Wassertropfen mit einem Durchmesser von  $80 \mu\text{m}$  bei ihrer Endgeschwindigkeit von  $0,17 \text{ m/s}$  in Luft bei  $5^\circ\text{C}$ .

Bei Reynolds-Zahlen um 1 ist die Annahme für schleichende Strömungen

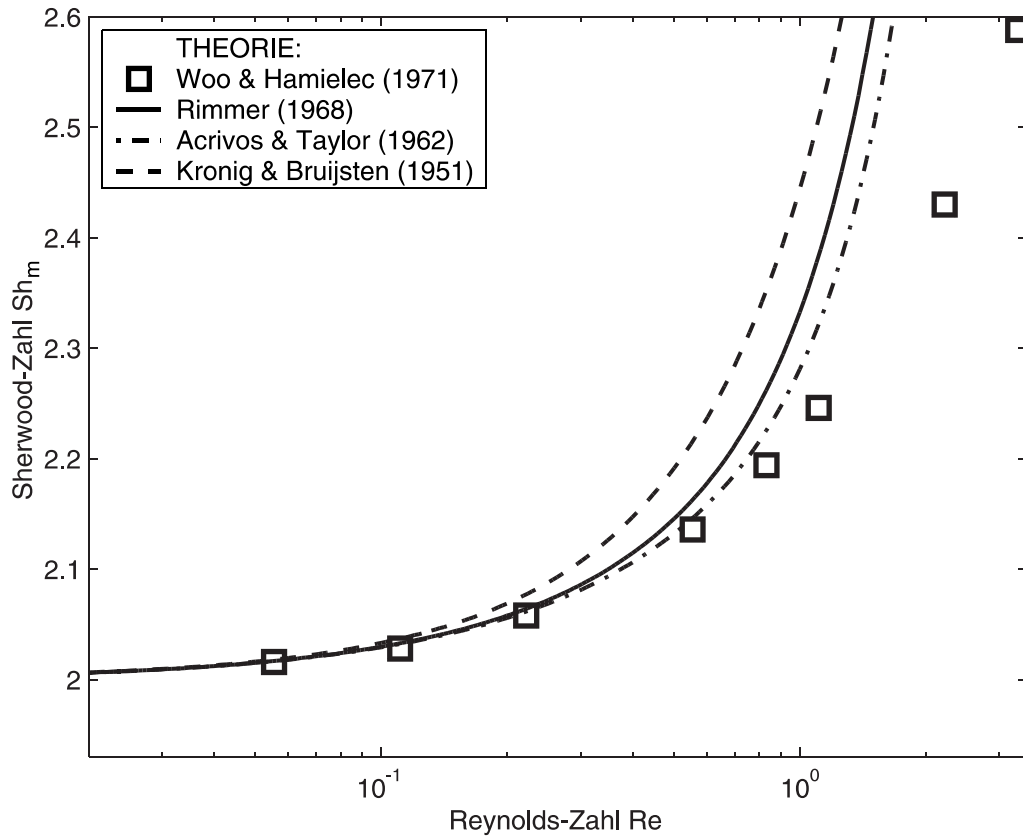


Abbildung 6.2: Sherwood-Zahlen als Funktion der Reynolds-Zahl gemäß verschiedener bekannter theoretischer Untersuchungen. Alle Daten wurden auf die Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  umgerechnet.

nicht mehr erfüllt, Trägheitskräfte können nicht vollständig vernachlässigt werden und das Strömungsfeld weicht von der Lösung von Stokes merklich ab. Oseen [31] und Proudman und Pearson [32] gaben auf unterschiedliche Weise für das Strömungsfeld Lösungen an, die einen erweiterten Gültigkeitsbereich haben. Diese Erweiterungen machen sich in Gleichung 3.6 als Terme höherer Ordnungen in  $Re$  bemerkbar: Die Lösung von Stokes enthält nur den ersten Term, die von Oseen nur die ersten beiden.

Für die Berechnung des Stofftransports bzw. der Sherwood-Zahl  $Sh$  bei  $Re \approx 1$  sind hier dementsprechend Berechnungen ungeeignet, die auf dem Strömungsfeld nach Stokes beruhen. Dazu gehört die Näherungslösung von Acrivos und Taylor [6]. Dagegen gab Rimmer [7] eine Entwicklung für die Sherwood-Zahl  $Sh$  mit Gültigkeit für  $Re < 1$  an. Für höhere Reynolds-Zahlen gibt es abgesehen von der Grenzschichttheorie (siehe [44]) nur numerische Lösungen wie von Woo und Hamielec [8] oder Dennis et al. [45]. Für die Anwendung der Grenzschichttheorie sind jedoch die Grenzschichten in den

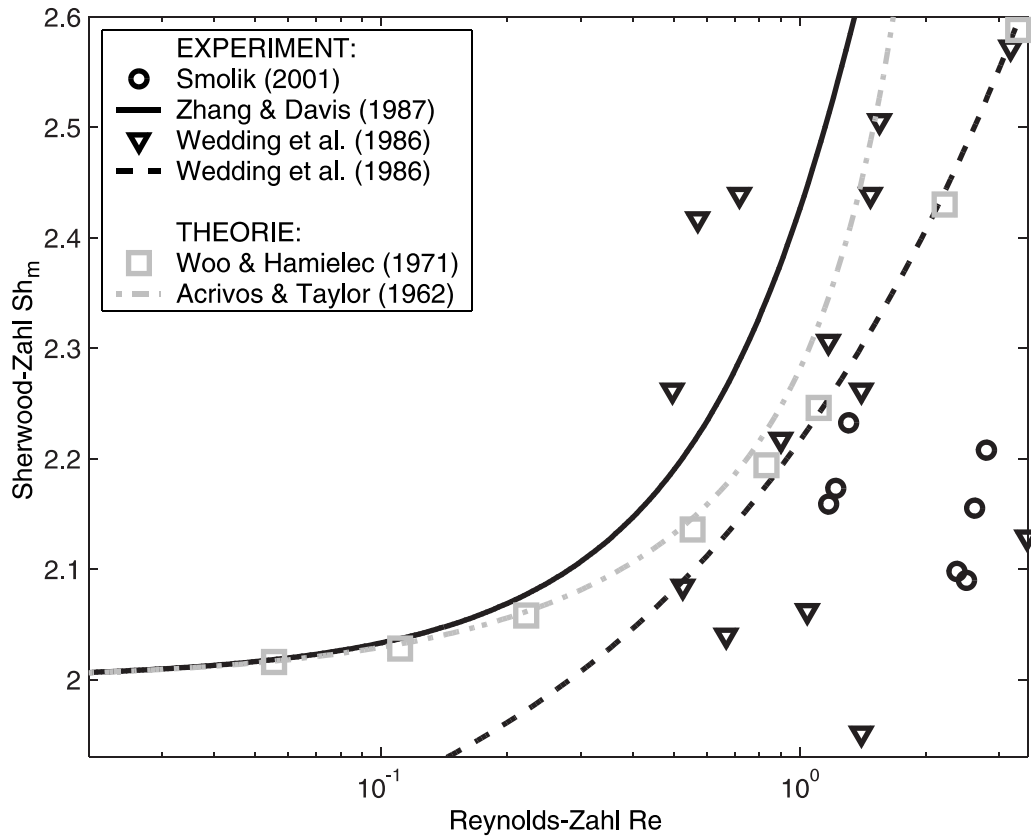


Abbildung 6.3: Sherwood-Zahlen als Funktion der Reynolds-Zahl gemäß verschiedener bekannter theoretischer und experimenteller Untersuchungen. Die Linien bei experimentellen Arbeiten stellen von den jeweiligen Autoren an die Messpunkte angepasste Kurven dar. Alle Daten wurden auf die Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  umgerechnet.

hier vorliegenden Fällen zu dick. Die Lösungen von Acrivos und Taylor [6], Rimmer [7] und Woo und Hamielec [8] sind in Abbildung 6.2 für die Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  dargestellt.

Die Untersuchungen im Bereich von Reynolds-Zahlen um 1 sind daher auch deshalb besonders interessant, weil hier die Grenze der analytischen Näherungslösungen liegt, aber auch weil experimentelle Ergebnisse in der Vergangenheit bei  $0,1 < Re < 2$  entweder nur wenige Datenpunkte zeigen (Smolik et al. [14]) oder große Streuung der Sherwood- und Nusselt-Zahl aufweisen ( $Sh$  bis zu  $\pm 10\%$  bei Kinzer und Gunn [9], bis zu  $\pm 12\%$  bei Wedding et al. [13]) und von den Theorien abweichen (Beard und Pruppacher [12], Smolik et al. [14]). Die Ergebnisse der genannten Arbeiten sind in Abbildung 6.3 und 6.4 dargestellt. Im Rahmen meiner Arbeit konnten zum ersten Mal in diesem Bereich präzisere Daten aufgenommen werden.

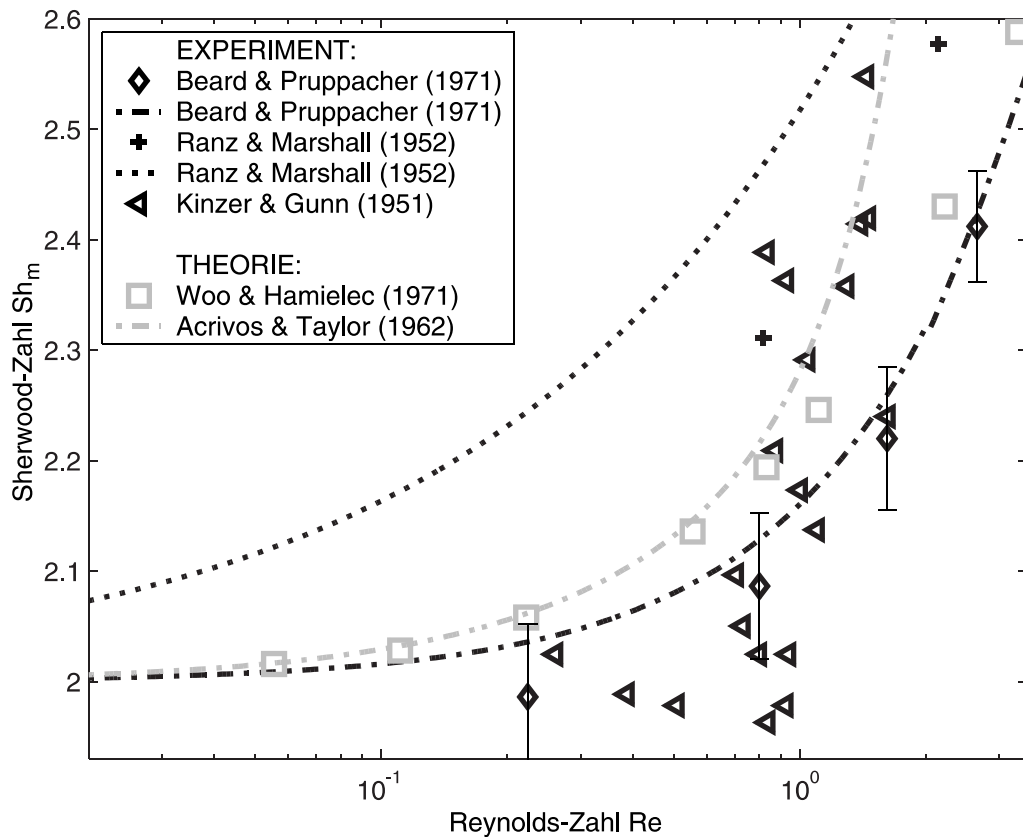


Abbildung 6.4: Sherwood-Zahlen als Funktion der Reynolds-Zahl gemäß verschiedener bekannter theoretischer und experimenteller Untersuchungen. Die Linien bei experimentellen Arbeiten stellen von den jeweiligen Autoren an die Messpunkte angepasste Kurven dar. Alle Daten wurden auf die Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  umgerechnet.

Die Messungen in diesem Kapitel zeichnen sich durch die große Zahl von untersuchten Tropfen aus, es sind durchschnittlich mehr als 100 pro Punkt in Abbildung 6.6 und insgesamt mehr als 700. Das wurde durch ein automatisiertes Messsystem ermöglicht. Im Gegensatz zu den meisten anderen Arbeiten wurden die Tropfen hier berührungslos fixiert und vermessen, sodass der Wärme- und Stofftransport nicht durch Wandkontakte gestört wird. Ein Vorteil gegenüber Windkanalexperimenten, wie von Beard und Pruppacher, bei denen die Tropfen allein durch die Reibungskraft in der Schwebe gehalten werden, ist die Unabhängigkeit von Gasgeschwindigkeit und Tropfengröße.

Im Anhang B werden die zuvor genannten theoretischen und experimentellen Arbeiten zum Stoff- und Wärmetransport von Kugeln bzw. Tropfen im Detail vorgestellt.

## 6.3 Berechnung der Sherwood-Zahl aus experimentellen Daten

In diesem Abschnitt wird beschrieben, wie das in Abschnitt 6.1 vorgestellte Modell für die Beschreibung der Experimente angewendet wird, die im Abschnitt 6.4 vorgestellt werden. Außerdem wird im Folgenden gezeigt, wie die Sherwood-Zahl aus experimentell zugänglichen Größen berechnet wird.

Zunächst werden die charakteristischen Größen definiert: Die charakteristische Länge  $L$  wird als Tropfendurchmesser  $L = 2R$ , die charakteristische Geschwindigkeit  $v$  als die Geschwindigkeit der parallelen Anströmung  $v_\infty$  definiert und  $\Delta\rho_A = \rho_{AS} - \rho_{A\infty}$  und  $\Delta T = T_S - T_\infty$  beziehen sich auf Werte an der Tropfenoberfläche und weit entfernt vom Tropfen.

Als Randbedingung für die parallel angeströmten kugelförmigen Tropfen wird  $\vec{v} = v_\infty \vec{e}_z$  weit entfernt vom Tropfen und  $\vec{v} = 0$  an der Tropfenoberfläche gewählt. Die Massenstromdichte  $\rho_A$  des Wasserdampfes (Stoff A) fern vom Tropfen ist  $\rho_{A\infty} = 0$ , da der Tropfen mit reinem Stickstoff angeströmt wird. Auf der Tropfenoberfläche wird  $\rho_A$  konstant durch

$$\rho_{AS} = p_{\text{sat}} M_A R_G T_S \quad (6.20)$$

festgelegt, wobei der Sättigungsdampfdruck  $p_{\text{sat}}$  über einer flachen Wasseroberfläche gemäß Anhang C von der Oberflächentemperatur  $T_S$  abhängt. Letztere wiederum wird ebenfalls als konstant angenommen und durch die folgende Energiebilanz bestimmt:

$$\int_S \vec{q}_S \cdot \vec{e}_n dA = -h_A \int_S \vec{j}_{AS} \cdot \vec{e}_n dA. \quad (6.21)$$

Auf der linken Seite steht der Wärmestrom durch die Oberfläche, auf der rechten Seite die pro Zeit entzogenen Verdampfungswärme. Mit der Definition der Sherwood- und der Nusselt-Zahl wird diese Gleichung zu

$$Nu_m k (T_S - T_\infty) = -h_A Sh_m D (\rho_{AS} - \rho_{A\infty}), \quad (6.22)$$

wobei  $h$  die Verdampfungswärme pro Masse ist. Die hier vorkommende Nusselt-Zahl  $Nu$  wird durch Annahme von Gleichung 6.18 und 6.19 auf die Sherwood-Zahl zurückgeführt:  $Nu(Re) = Sh(Re D/a)$ . Damit ergibt sich eine nichtlineare Gleichung, die in dieser Arbeit numerisch gelöst wird. Auch die Abhängigkeit von  $h$  von der Temperatur  $T_S$  wird dabei berücksichtigt.

Andere Autoren verfahren statt dieser Temperaturberechnung wie folgt: Wedding et al. [13] benutzen ohne Temperaturmessung die Gleichung  $Nu = c_1 + c_2 Re^{1/2} Sc^{1/3}$ , was jedoch nicht für kleine Reynolds-Zahlen gilt. Zhang

und Davis [30] untersuchen Hexadecan statt Wasser, sodass durch den geringeren Dampfdruck die Tropfen wesentlich langsamer verdunsten und ihre Temperatur mit der Umgebungstemperatur gleichgesetzt werden kann. Viele Autoren benutzten ein Thermoelement im Tropfen zur Temperaturmessung, wodurch allerdings Stoff- und Wärmetransport und Tropfenform gestört werden. Im Kapitel 7 wird dagegen gezeigt, wie ich im Rahmen meiner Arbeit Tropfentemperaturen berührungslos durch spontane Raman-Streuung gemessen habe. Diese Messungen bestätigen die Annahme  $Nu(Re) = Sh(Re D/a)$  im Rahmen der Messunsicherheit. Für die Temperatur  $T_\infty$  fern vom Tropfen wird die experimentell gemessene Umgebungstemperatur eingesetzt.

Um das Experiment durch das Modell möglichst gut zu beschreiben, wird der Diffusionskoeffizient  $D$  von Wasserdampf (Stoff A) und Stickstoff (Stoff B) sowie die Wärmeleitfähigkeit  $k$ , die Wärmekapazität  $c_p$  und die dynamische Viskosität  $\eta$  gemäß Anhang C bei einer Referenztemperatur  $T_{\text{ref}} = (2/3)T_S + (1/3)T_\infty$  und einer Referenz-Massendichte  $\rho_{A\text{ref}} = (2/3)\rho_{AS} + (1/3)\rho_{A\infty}$  berechnet, wie Hubbard et al. [50] vorgeschlagen haben. Dadurch kann die Sherwood-Zahl in diesem Experiment präziser bestimmt werden.

Zur Qualität der im Rahmen meiner Arbeit gewonnenen Daten trägt außerdem bei, dass der Diffusionskoeffizient  $D$  im eigenen Experiment in ruhendem Gas bestimmt wird, denn der Literaturwert ist mit einer Unsicherheit von  $\pm 8\%$  behaftet [76]. Dazu wird die Tatsache verwendet, dass in einem ruhenden Gas mit  $\vec{v} = 0$  die Sherwood-Zahl einer Kugel  $Sh = 2$  ist [8]. Diese Messung in ruhendem Gas ermöglichte die neu entwickelte elektrodynamische Falle; in einer aerodynamischen Falle ist dies nicht möglich. Bezüglich der Temperaturabhängigkeit von  $D$  wird jedoch weiterhin die Gleichung im Anhang C verwendet.

Experimentell bestimmte Größen sind der Tropfendurchmesser  $d$  und seine zeitliche Änderung  $dd/dt$ . Daraus ergibt sich direkt die Massenänderung des Tropfens pro Zeit

$$\rho_L \frac{d}{dt} \frac{\pi}{6} d^3 = \int_S \vec{n}_{AS} \cdot \vec{e}_n dA, \quad (6.23)$$

wobei  $\rho_L$  die Dichte des flüssigen Wassers ist und sich  $\vec{n}_{AS}$  in einen Diffusionsanteil und einen Konvektionsanteil zerlegen lässt:

$$\vec{n}_{AS} \cdot \vec{e}_n = \vec{j}_{AS} \cdot \vec{e}_n + \rho_{AS} \vec{v} \cdot \vec{e}_n. \quad (6.24)$$

Da auf der Tropfenoberfläche  $\vec{v} = 0$  gewählt wurde gibt es dort kein Konvek-



tion und man erhält mit der Definition der mittleren Sherwood-Zahl:

$$Sh_m = -\frac{\rho_L d}{2(\rho_{AS} - \rho_{A\infty}) D} \frac{dd}{dt}. \quad (6.25)$$

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, wie im Rahmen dieser Arbeit die Sherwood-Zahl anhand von experimentellen Messwerten für  $d$ ,  $dd/dt$ ,  $v_\infty$  und  $T_\infty$  bestimmt wird. Wie im vorigen Abschnitt gezeigt, lassen sich durch Einführung der Sherwood-Zahl die Anzahl der Parameter reduzieren, die im Experiment zu variieren sind: Obwohl bei festen Werten von  $D$ ,  $\Delta\rho_A$  und  $L$  gemessen wird, lässt sich die Ergebnisse auf andere Parameterbereiche übertragen. Zu variieren bleibt die Reynolds-Zahl, wie es in folgenden Abschnitt experimentell getan wird, und das Verhältnis  $\nu/D$  (Schmidt-Zahl).

## 6.4 Experimentelle Untersuchung des Stofftransports von Wassertropfen in Stickstoff

Im vorhergehenden Abschnitt wurde erläutert, wie die Sherwood-Zahl bei der Tropfenverdampfung berechnet werden kann. Dafür sind folgende experimentelle Daten nötig: Der Tropfendurchmesser  $d(t)$  als Funktion der Zeit  $t$  sowie die Temperatur  $T_\infty$  und die Geschwindigkeit  $v_\infty$  des umgebenden Stickstoffs.

Die Bestimmung des Tropfendurchmessers  $d$  anhand des elastisch gestreuten Lichts wurde bereits im Abschnitt 3.2.4 beschrieben. Die Temperatur  $T_\infty$  wird mit 100  $\Omega$ -Platin-Widerständen im Stickstoff-Zulauf der Falle und in der Umgebung im Labor mit einer Messunsicherheit von  $\pm 0,3 K$  gemessen. Die Verdampfungsmessung wurde nur dann durchgeführt, wenn die beiden Temperaturen innerhalb der Messunsicherheit übereinstimmen. Dadurch wird vermieden, dass natürliche Konvektion aufgrund unterschiedlicher Temperaturen von Fallengehäuse und Gas entsteht. Die Gasgeschwindigkeit wird mit der Kalibrierkurve im Abschnitt 3.2.6 aus dem Volumenstrom des Gases ermittelt, der wie im Abschnitt 3.1.3 mit einem Schwebekörperdurchflussmesser bestimmt wird.

Vor der Injektion jedes Tropfens wurde die Falle für mehr als 5 s mit reinem Stickstoff gespült, um den Wasserdampf der vorhergehenden Tropfen zu entfernen. Während der Verdampfung des Tropfens wird die Tropfengröße mit einer Abtastrate von 98,45 Hz bestimmt. Da sich wie in Abschnitt 3.2.4 eine Wurzelfunktion daran sehr gut anpassen lässt, ist das  $d^2$ -Gesetz (Gleichung 3.2) erfüllt und somit  $\beta_d = -2d\dot{d}$  während der Verdampfung eines

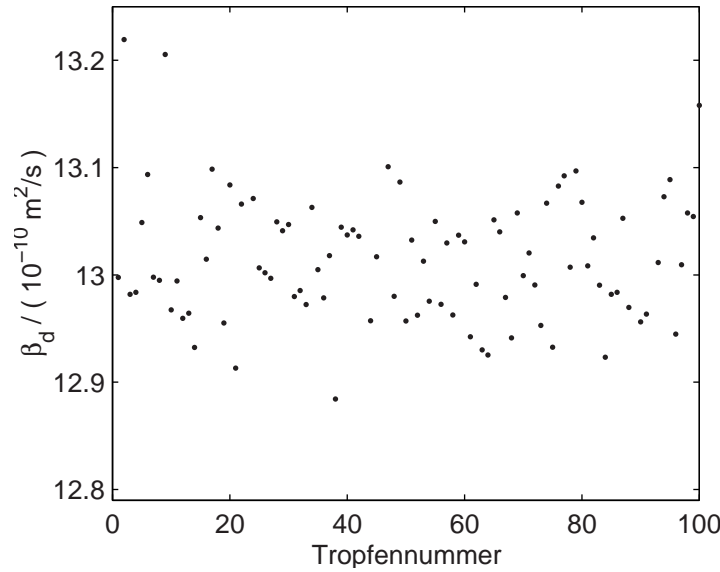


Abbildung 6.5:  $\beta_d = -2d \dot{d}$ , bestimmt aus dem Tropfendurchmesser  $d$  und der zeitlichen Änderung  $\dot{d}$  des Tropfendurchmessers für 100 einzelne Tropfen.

einzelnen Tropfens konstant, wobei  $d$  der Tropfendurchmesser und  $\dot{d}$  seine zeitliche Ableitung ist.

Zunächst wurde diese Messung in ruhendem Stickstoff an mehr als 200 Tropfen durchgeführt. Abbildung 6.5 zeigt das so ermittelte  $\beta_d$  für einen Teil der Tropfen. Mit der Bedingung  $Sh = 2$  für  $Re = 0$ , die zum Beispiel bei Woo und Hamielec [8] gezeigt ist, wird der Diffusionskoeffizient  $D$  mit dem mittleren  $\beta_d = -2d \dot{d}$  bestimmt.

Anschließend wurde diese Messung in strömendem Stickstoff für 7 verschiedene Gasgeschwindigkeiten wiederholt. Mit dem mittleren  $\beta_d = -2d \dot{d}$  wurde jeweils die Sherwood-Zahl mit den Gleichungen 6.20, 6.22 und 6.25 bestimmt und als Kreuzungspunkte der Fehlerbalken in Abbildung 6.6 eingetragen. Um  $Nu(Re) = Sh(Re D/a)$  anzuwenden wurde ein Polynom 3. Grades  $f(Re)$  so angepasst, dass es möglichst gut mit den über  $Nu = f(Re D_{AB}/a)$  berechneten Sherwood-Zahlen übereinstimmt. Für die Reynolds-Zahl nach Gleichung 6.1 wurde als charakteristische Länge  $L$  der zeitlich gemittelte Tropfendurchmesser eingesetzt.

Bei der Messunsicherheit für die Reynolds-Zahl wurde der Ablesefehler des Schwebekörperdurchflussmessers, die Unsicherheit durch die Kalibrierung von  $\pm 0,01$  m/s und eine Messunsicherheit von  $\pm 5 \mu\text{m}$  für den Tropfendurchmesser berücksichtigt. Eigentlich beträgt die Messunsicherheit für die Bestimmung des Tropfendurchmessers  $\pm 0,5 \mu\text{m}$ , die höhere Messunsicherheit trägt

jedoch dafür Rechnung, dass für die Bildung der Reynolds-Zahl der mittlere Tropfendurchmesser eingesetzt wird und die Verdampfungsrate  $\beta_d = -2d\dot{d}$  während der Verdampfung als konstant betrachtet wird. Die Messunsicherheit für die Sherwood-Zahl wurde aus der Messunsicherheit der Verdampfungsrate  $\beta_d$  von  $\pm 0,1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  bestimmt, die gleich der Standardabweichung der Messdaten gewählt wurde.

Wie die in Abschnitt 6.2 vorgestellte Literatur zeigt, hängt die Sherwood-Zahl auch wesentlich von der Schmidt-Zahl, dem Verhältnis von kinematischer Viskosität zum Diffusionskoeffizienten ab. Die Schmidt-Zahl beträgt hier im Experiment  $Sc = 0,64$  und wurde nicht verändert. Es ist jedoch interessant in weiteren Experimenten auch diese Abhängigkeit zu vermessen, indem man statt Stickstoff verschiedene andere Gase wie zum Beispiel Helium verwendet. Die Prandtl-Zahl, das Verhältnis von kinematischer Viskosität zur Temperaturleitfähigkeit, beträgt in diesem Experiment  $Pr = 0,72$ .

Abbildung 6.6 zeigt die Ergebnisse der eigenen Messungen im Vergleich zu bekannten theoretisch berechneten Daten. Die für große Reynolds-Zahlen auf Basis der Grenzschichttheorie ermittelten Formeln von Ranz und Marshall [10, 11] (siehe Gleichung B.6 und Abbildung 6.4) sowie von Wedding et al. [13] (siehe Gleichung B.9 und Abbildung 6.3) sind hier erwartungsgemäß nicht gültig. Im Bereich von Reynolds-Zahlen unter 0,4 ist die Abweichung der theoretisch berechneten Kurven untereinander im Vergleich zur Messunsicherheit der eigenen Daten gering, so dass hier nicht zu unterscheiden ist. Im Bereich von Reynolds-Zahlen über 1 gibt es zu den Formeln von Kronig und Bruijsten [5] sowie von Rimmer [7] größere Abweichungen. Bei steigenden Reynolds-Zahlen über 1 zeichnet sich ein Tendenz zu den numerischen Berechnungen von Woo und Hamielec [8] ab. Daher sind diese zur theoretischen Beschreibung am besten geeignet. Unterhalb von  $Re = 1$  können die Ergebnisse von Woo und Hamielec [8] am besten durch die analytische Formel von Acrivos und Taylor [6] (Gleichung B.3) ersetzt werden.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeichnen sich durch die große Zahl von über 700 untersuchten Tropfen zwischen  $Re=0,01$  und  $Re=2$  aus. Die Streuung der Messdaten konnte gegenüber denen von Kinzer und Gunn [9], Smolik et al. [14] und Wedding wesentlich reduziert werden. Auch gegenüber Beard und Pruppacher ist die Messunsicherheit geringer. Im Gegensatz zu Wedding et al., Smolik et al. sowie Ranz und Marshall wurden die Tropfen in meiner Arbeit völlig berührungslos untersucht. Dadurch sind bei der Auswertung keine Korrekturen für die Störung des Stoff- und Wärmetransports durch die Aufhängung (Kapillare oder Draht) nötig.

Im Folgenden wird Schritt für Schritt diskutiert, wie verschiedene Effekte die Messung der Sherwood-Zahl beeinflussen können. Dadurch werden die gemachten Annahmen bzw. Näherungen gerechtfertigt.

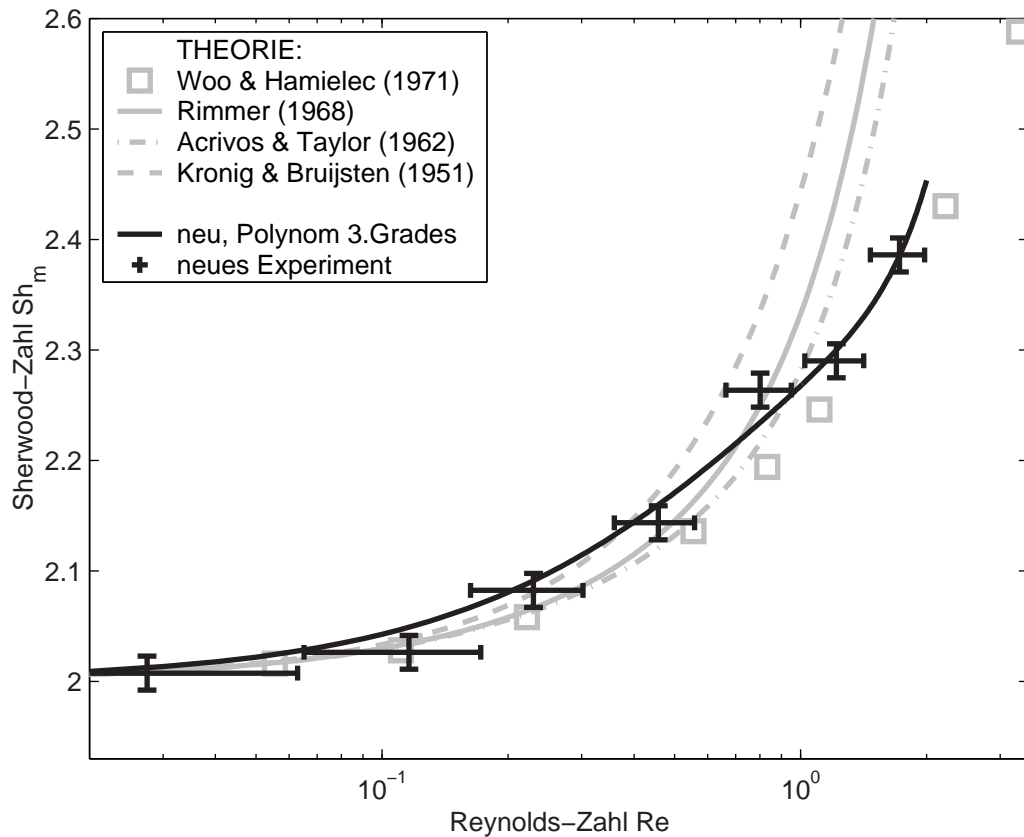


Abbildung 6.6: Sherwood-Zahl als Funktion der Reynolds-Zahl. Bei den neuen Messungen in diesem Kapitel ist die Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  und die Prandtl-Zahl  $Pr = 0,72$ . Die Daten anderer Arbeiten wurden auf diese Schmidt-Zahl umgerechnet.

## Homogene Tropfentemperatur im Gleichgewicht

Da das verwendete Modell quasistationär ist, jedoch die Tropfentemperatur vor der Injektion gleich der Umgebungstemperatur ist, muss im Folgenden abgeschätzt werden, wann die Tropfentemperatur sich weit genug der Gleichgewichtstemperatur genähert hat. Chang und Davis [47] zeigen Berechnungen für Wassertropfen mit einer Anfangstemperatur von 298 K in Luft (298 K). Ihnen zufolge weicht schon nach 40 ms die Tropfentemperatur um weniger als 1,5 K von der Gleichgewichtstemperatur ab (10% der ursprünglichen Differenz). Zusätzlich berechnete Belal Al Zaitone [55] numerisch die zeitabhängige Temperaturverteilung in einem umströmten Tropfen mit anfänglich 20°C in Luft von 20°C. Abbildungen 6.7 und 6.8 zeigen,

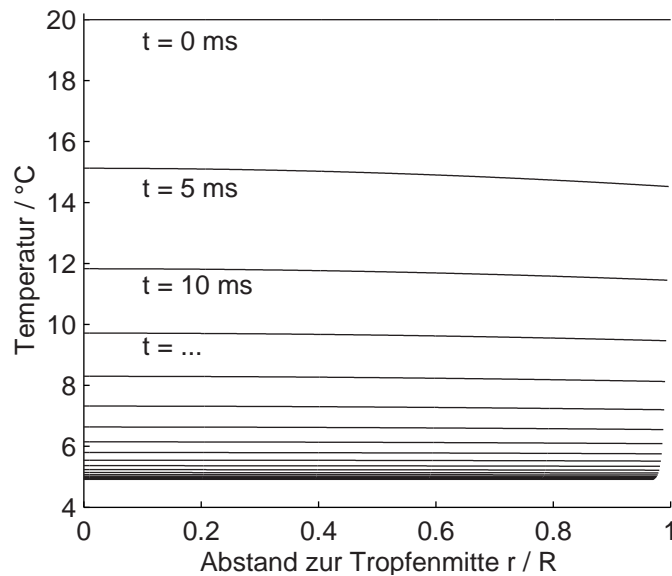


Abbildung 6.7: Simulation der zeitabhängigen radialen Temperaturverteilung in einem verdampfenden Wassertropfen in ruhender Luft. Die Temperatur der Luft fern vom Tropfen beträgt  $20^{\circ}\text{C}$  der Tropfen hat anfänglich eine homogene Temperatur von  $20^{\circ}\text{C}$  und  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser. Der Abstand  $r$  ist normiert auf den Tropfenradius  $R$ . Berechnet von Belal Al Zaitone [55]

dass nach 60 ms die Tropfentemperatur im gesamten Tropfen um weniger als  $0,2\text{ K}$  von der Gleichgewichtstemperatur abweicht. Weil diese Abweichung innerhalb der Messunsicherheit der Temperaturmessung des Stickstoffs liegt, ist die Annahme der Gleichgewichtstemperatur und der homogenen Tropfentemperatur nach 60 ms sinnvoll. Um sicher zu gehen, wurden keine Messungen der Verdampfungsrate aus den ersten 500 ms nach der Stabilisierung des Tropfens verwendet.

Die genannten Berechnungen setzten eine kugelsymmetrische Temperaturverteilung voraus. Bei verdampfenden Tropfen in einer Strömung ist dies nicht exakt, da der Stofftransport an der Oberfläche örtlich variieren kann. Dass jedoch die Temperaturunterschiede auf der Tropfenoberfläche in diesem Experiment hinreichend klein sind, wird plausibel, wenn man die Wärmeleitfähigkeit  $580 \cdot 10^{-3}\text{ W}/(\text{K m})$  von flüssigem Wasser bei  $10^{\circ}\text{C}$  und  $10^5\text{ Pa}$  betrachtet [48], die gegenüber der Wärmeleitfähigkeit  $25 \cdot 10^{-3}\text{ W}/(\text{K m})$  von gasförmigem Stickstoff um mehr als Faktor 20 größer ist.

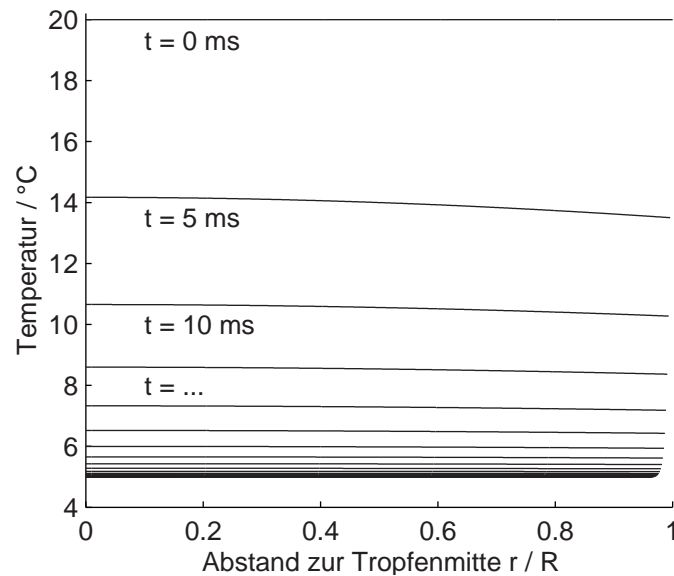


Abbildung 6.8: Simulation wie in Abbildung 6.7, das Gas strömt jedoch mit einer Geschwindigkeit von 0,5 m/s. Berechnet von Belal Al Zaitone [55]

### Radiale Konvektion an der Tropfenoberfläche (Stefan-Strom)

In dem verwendeten Modell wurde angenommen, dass es auf der Tropfenoberfläche keine Konvektion gibt. Dies bedeutet jedoch, dass dort aufgrund des Massendichtegradienten des Stoffes B Stickstoff in den Tropfen diffundiert. Da im Experiment im Gleichgewichtszustand jedoch kein Stickstoff in den Tropfen eindringen kann, entsteht eine radiale Strömung vom Tropfen weg, die die Diffusion des Stickstoffs kompensiert. Diese Konvektion ist unter dem Begriff „Stefan-Strom“ bekannt. Nach den von Fuchs [49] angegebenen Gleichungen erhöht sich bei einem maximalen Dampfdruck von 1000 Pa die pro Zeiteinheit verdampfte Masse um weniger als 0,5%. Dies liegt innerhalb der Messunsicherheit und wurde deshalb vernachlässigt.

### Räumliche Variation des Diffusionskoeffizienten, der Wärmeleitfähigkeit und der Viskosität

In dem in Abschnitt 6.1 beschriebenen Modell wurde angenommen, dass der Diffusionskoeffizient  $D$ , die Wärmeleitfähigkeit  $k$ , die Wärmekapazität  $c_p$  und die dynamische Viskosität  $\eta$  konstant sind. Im vorliegenden Experiment beträgt die Temperatur des Gases typischerweise 278 K an der Tropfen-

berfläche und 296 K weit entfernt davon. Der Diffusionskoeffizient von Luft beträgt dort  $D = 2,29 \text{ m}^2/\text{s}$  bzw.  $D = 2,55 \text{ m}^2/\text{s}$  nach Anhang C. In dieser Arbeit lässt sich der Diffusionskoeffizient trotzdem als konstant betrachten, wenn man seinen Wert bei der Referenztemperatur  $T_{\text{ref}} = (2/3)T_0 + (1/3)T_\infty$  verwendet. Dies hat sich in der Praxis bewährt und wird von Hubbard et al. [50] als die beste Wahl vorgeschlagen.

## **Dufour-Effekt (Diffusionsthermoeffekt) und Soret-Effekt (Thermodiffusionseffekt)**

Unter dem Dufour-Effekt versteht man den durch einen Konzentrationsgefälle hervorgerufenen Wärmetransport. Der Soret-Effekt ist dagegen eine durch ein Temperaturgefälle angetriebene Diffusion. Die Konzentrations- und Temperaturgefälle im vorliegenden Experiment sind hinreichend klein, um diese Effekte zu vernachlässigen.

## **Natürliche Konvektion**

Da in der Realität die Massendichte des Gases mit Temperatur und Dampfkonzentration variiert, entsteht Auftrieb, der eine Strömung hervorruft und dadurch den Stoff- und Wärmetransport verstärkt. Die Grashof-Zahl, die dimensionslose Kennzahl für natürliche Konvektion, beträgt in der vorliegenden Arbeit maximal  $2 \cdot 10^{-5}$  basierend auf der Konzentrationsdifferenz und  $4 \cdot 10^{-4}$  für die Temperaturdifferenz. Singh und Hasan [51] haben den Einfluss natürlicher Konvektion auf den Wärmetransport bei kleinen Grashof-Zahlen numerisch berechnet. Für  $Gr=0,01$  bzw.  $Gr=0,05$  und  $Pr=0,7$  erhöht sich demnach die Nusselt-Zahl von  $Nu_m=2$  auf  $Nu_m=2,0474$  bzw.  $Nu_m=2,1080$  an. Da die Grashof-Zahl im vorliegenden Experiment um mehr als einen Faktor 100 geringer ist, lässt sich absehen, dass die Verstärkung des Wärme- und Stofftransports durch natürliche Konvektion im Rahmen der Messunsicherheit liegt.

## **Wärmetransport durch Wärmestrahlung**

Wasser absorbiert Laserlicht, erwärmt sich dadurch und verstärkt den Stofftransport. Bei 500 nm Wellenlänge beträgt der Absorptionskoeffizient etwa  $0,005 \text{ m}^{-1}$  [52]. Von einem Laserstrahl mit einer Leistung von 20 mW wird dementsprechend auf einem Absorptionsweg von  $50 \mu\text{m}$  eine Leistung von  $5 \mu\text{W}$  absorbiert. Dies ist im Vergleich mit dem typischen Energietransport durch Wärmeleitung von 0,1 mW vernachlässigbar.

## Einschränkung der Diffusion durch die Elektroden

Die Einschränkung der Diffusion durch die Elektroden kann den Stofftransport abschwächen. Die Einschränkung ist in jedem Fall geringer als die Einschränkung durch eine gedachte kugelförmige Schale mit 4 mm Radius um das Zentrum. Verdampft ein Wassertropfen von 50  $\mu\text{m}$  Durchmesser vollständig in diese mit Stickstoff gefüllte gedachte Kugel, beträgt der Stoffmengenanteil von Wasserdampf  $3 \cdot 10^{-4}$  in der homogenen Gasmischung. Das sind nur 3% des typischen Stoffmengenanteils von  $10^{-2}$  an der Oberfläche der verdunstenden Tropfen. Dies gilt jedoch nur nach vollständiger Verdampfung nachdem eine homogene Konzentration erreicht ist. Während der Verdampfung ist dieser Wert geringer. Außerdem kann in Wirklichkeit der Wasserdampf in 40% des gesamten Raumwinkels mindestens 25 mm frei bis zur Gehäusewand diffundieren. Daher kann man den Einfluss der Einschränkung der Diffusion auf die Verdampfungsrate im Rahmen der Messunsicherheit vernachlässigen.

## Abweichung des Strömungsfelds in der Falle ohne Tropfen von einer Parallelströmung

Das vollständige Strömungsfeld kann nur durch numerische Berechnungen gewonnen werden. Im Folgenden werden jedoch einige Abschätzungen vorgestellt, die plausibel machen, dass das Strömungsfeld um das Fallenzentrum ohne Tropfen hier hinreichend mit einer Parallelströmung übereinstimmt.

Die Strömung in der Gaszuführung, das heißt im Inneren der unteren Innenelektrode, ist laminar, weil die Reynolds-Zahl bezogen auf den Durchmesser der Gaszuführung im Experiment weniger als 200 beträgt. Da der Innendurchmesser der Innenelektrode konstant 2 mm für mehr als 30 mm beträgt, kann man von einer Poiseuille-Strömung am Ende der Röhre ausgehen. Es ist zu erwarten, dass das Geschwindigkeitsprofil in der horizontalen Ebene durch das Fallenzentrum mit dem parabelförmigen Geschwindigkeitsprofil der Poiseuille-Strömung am Ende der Röhre ähnlich ist, da der Abstand nur doppelt so groß wie der Durchmesser ist.

In einem parabelförmigen Geschwindigkeitsprofil ist bei etwa  $1/3$  des Innenradius die Geschwindigkeit nur 10% geringer als die Geschwindigkeit im Zentrum. Weil das Konzentrationsfeld um den Tropfen im Gleichgewicht in ruhendem Gas proportional zu  $1/r$  ist und  $1/3$  des Innenradius hier stets mehr als 13 Tropfenradien entspricht, beträgt die Dampfkonzentration dort weniger als 8% der Konzentration an der Tropfenoberfläche. Diese Werte zeigen, dass die Konzentration dort gering ist, wo die Geschwindigkeitsabweichung groß ist. Da in der Regel das Geschwindigkeitsprofil über dem Ende der Innenelektrode eher verbreitert wird, werden Abweichungen noch geringer.



Deshalb wird der Einfluss der Abweichung des Strömungsfelds vernachlässigt.

Während der Kalibrierung der Gasgeschwindigkeit wurde das elektrische Wechselfeld möglichst klein eingestellt, um die Kraft auf den Tropfen möglichst präzise zu messen. Dabei wurden keine zusätzlichen Oszillationen oder zufälligen Bewegungen beobachtet die auf eine instationäre Strömung oder auf Turbulenz hindeuten.

## Reinheit der Tropfen

Die Wassertropfen wurden durch einen Druckkopf erzeugt, der vor jeder Messreihe sorgfältig gereinigt, gespült und mit zweifach destilliertem Wasser gefüllt wurde. Da  $\beta_d$  zwischen verschiedenen Messreihen nicht mehr als zwischen aufeinanderfolgenden Tropfen abweicht, wird der Einfluss von Verunreinigungen vernachlässigt.

## Reinheit des Stickstoffs

Der Stickstoff für die Strömung in der Falle wurde in einer Gasflasche aufbewahrt. Der Hersteller gibt einen Volumenanteil von Wasserdampf von weniger als  $3 \cdot 10^{-5}$  an. Dies entspricht etwa 0,3% der typischen Wasserdampfkonzentration an der Tropfenoberfläche und wird vernachlässigt.

## Kontinuumsannahme

Das Konzept der Sherwood-Zahl beruht darauf, dass das Gas als ein Kontinuum betrachtet wird. Dies ist nicht gerechtfertigt bei kleinen Gasdichten, bei denen die mittlere freie Weglänge der Moleküle in der Größenordnung der Tropfengröße liegt. An der Tropfenoberfläche kann dann zum Beispiel ein Temperatursprung entstehen oder die Haftbedingung nicht mehr erfüllt sein. In diesem Zusammenhang wird die Knudsen-Zahl  $Kn$ , das Verhältnis des Tropfenradius zur mittleren freien Weglänge, verwendet. Im Grenzfall von  $Kn$  gegen Unendlich liegt der Bereich freier Molekülbewegung vor. Der Grenzfall von  $Kn$  gegen 0 ist der Kontinuumsbereich. Mit Hilfe des Diffusionskoeffizienten wurde für das vorliegenden Experiment eine Knudsen-Zahl von 0,005 berechnet [18]. In diesem Bereich ist die Kontinuumsannahme sinnvoll.

## Verformung des Tropfens

Rayleigh berechnete die Resonanzfrequenz von Tropfen [57]: Bei reinen ungeladenen Wassertropfen von  $50 \mu\text{m}$  Durchmesser liefert seine Formel 500 kHz

als Resonanzfrequenz. Da diese Frequenz weit entfernt ist von der typischen Frequenz des elektrischen Wechselfelds in der Falle von 200 Hz, kann die Verformung des Tropfens vernachlässigt werden. Außerdem wurden zusätzliche Messungen von optischen Strukturresonanzen wie in Kapitel 4 durchgeführt, die sich bei Verformungen stark ändern. Auch dabei gab es keine Hinweise auf Verformungen.

## **Dampfdruckerhöhung an gekrümmten Oberflächen (Kelvin-Effekt)**

Mit abnehmender Tropfengröße, wird die Krümmung der Oberfläche stärker. Die dadurch verursachte Erhöhung des Sättigungsdampfdrucks ist unter dem Begriff Kelvin-Effekt bekannt. Bei einem Wassertropfen von  $2\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser ist der Sättigungsdampfdruck 0,1% höher als an einer flachen Wasseroberfläche [53]. Da hier nur größere Tropfen vermessen wurden, wurde die daraus folgende Erhöhung der Stofftransports vernachlässigt.

## **Schwingungen der Tropfenposition**

Bei verdampfenden Tropfen wird das elektrische Gleichfeld zur Kompensation der Gewichtskraft fortlaufend nachgeregelt, um Tropfenschwingungen zu vermeiden. Da jeder Regelkreis eine Verzögerung hat, lassen sich diese Schwingungen nie vollständig unterdrücken. Die Amplitude der Schwingungen im vorliegenden Experiment beträgt in der Regel weniger als  $10\text{ }\mu\text{m}$ . Um den Einfluss auf den Stofftransport zu testen, wurde die Amplitude bewusst auf mehrere Tropfendurchmesser erhöht. Dabei blieb die Verdampfungsrate im Rahmen der Messunsicherheit unverändert. Das bestätigt, dass Tropfenschwingungen hier vernachlässigt werden können.

## **Strömung innerhalb des Tropfens**

Durch Scherkräfte an der Oberfläche eines Tropfens in einem viskosen Gas wird eine Strömung im Inneren des Tropfens hervorgerufen (siehe Lösung von Rybczynski und Hadamard, [56]). Die innere Strömung kann die Relativgeschwindigkeit zwischen der Tropfenoberfläche und der ungestörten Gasströmung reduzieren. Daher ist eine Erniedrigung der Stofftransports zu erwarten. Da die dynamische Viskosität von flüssigem Wasser bei Raumtemperatur 50mal höher als die von Stickstoff ist, sind im vorliegenden Experiment jedoch keine merklichen Einflüsse zu erwarten.

## Elektrische Ladungen an der Tropfenoberfläche

Experimente wie die von Leisner et al. [16] zeigen, dass die elektrische Ladung eines Tropfens solange erhalten bleibt, bis Tropfeninstabilitäten auftreten. Hohe Ladungsdichten an der Tropfenoberfläche können die Verdunstungsrate erniedrigen, wie Bhalwankar et al. [54] beobachtet haben. Deshalb wurde im vorliegenden Experiment die elektrische Spannung zwischen dem Tropfengenerator und der Ladeelektrode um Faktor 3 reduziert um die Tropfenladung zu variieren. Dabei wurde keine Veränderung der Verdunstungsrate beobachtet. Außerdem konnte keine nennenswerte Abweichung vom  $d^2$ -Gesetz beobachtet werden, die auf den Einfluss elektrischer Ladungen schließen lässt. Deshalb kann der Einfluss der elektrischen Ladung auf den Stofftransport vernachlässigt werden.

## 6.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein Überblick über bereits bekannte theoretische und experimentelle Arbeiten zur Bestimmung der Sherwood-Zahl von Kugeln bzw. Tropfen bei Reynolds-Zahlen um 1 gegeben [6, 7, 8, 9, 12, 13, 14, 30]. Dabei wurde gezeigt, dass diese teilweise erheblich voneinander abweichen. Die bekannten experimentellen Datensätze weisen teilweise starke Streuung auf oder wurden nicht berührungslos gewonnen. Deshalb wurden eigene berührungslose Messungen mit der im Rahmen meiner Arbeit neu entwickelten elektrodynamischen Falle an Wassertropfen in Stickstoff durchgeführt. Dieses Experiment zeichnet sich besonders durch die große Zahl von mehr als 700 untersuchten Tropfen aus und durch die berührungslose Untersuchungsmethode. Auf Grundlage der statistischen Streuung der Messungen wird für die Messunsicherheit der Sherwood-Zahl 0,015 angegeben, die geringer ist als bei den bisher bekannten Arbeiten. Aufgrund der Ergebnisse kann von den theoretischen Berechnungen in dem hier untersuchten Bereich bis  $Re = 2$  das numerische Verfahren von Woo und Hamiliec [8] empfohlen werden. In der Diskussion wurden alle wichtigen verwendeten Annahmen und Näherungen begründet. Die Tropfentemperatur wurde hier für die Bestimmung von  $Sh$  berechnet. Im nächsten Kapitel wird sie durch berührungslose Temperaturmessung experimentell bestätigt. Bei den Versuchsbedingungen waren die Schmidt-Zahl und die Prandtl-Zahl konstant ( $Sc = 0,64$  und  $Pr = 0,72$ ). Mit der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Falle lassen sich durch Austausch des Gases weitere Schmidt- und Prandtl-Zahlen untersuchen. Der Bereich der möglichen Reynolds-Zahl war in diesem Experiment durch die maximale Spannung der Gleichspannungsverstärkung begrenzt, die mit der zulässigen Reibungskraft am Tropfen verbunden ist. In weiteren Experimenten kann der Bereich jedoch vermutlich über  $Re = 2$  erweitert werden.

In dieser Arbeit wurde der Wärme- und Stofftransport von Tropfen präziser als bisher bestimmt. Das liefert einen wichtigen Beitrag zur Verbesserungen von Spray- und Aerosolmodellen für unsere Atmosphäre und unser Klima, bei Sprühtrocknern, im Pflanzenschutz, in Verbrennungsmotoren. Außer in der letzten Anwendung spielt dabei Wasser eine wichtige Rolle.

# Kapitel 7

## Temperaturen verdampfender Tropfen in Strömungen bei Reynolds-Zahlen um eins

*Im vorigen Kapitel wurde davon ausgegangen, dass der Wärmetransport in gleicher Weise wie der Stofftransport von der Gasgeschwindigkeit abhängt. Um das experimentell zu überprüfen, ist es nötig, die Tropfentemperatur zu messen. Die von mir durchgeführten und in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen zum Einfluss der Strömung auf die Verdampfung von Einzeltropfen ist die erste, bei der Tropfentemperaturen berührungslos gemessen werden konnten. Dies wurde durch die im Rahmen meiner Arbeit neu entwickelte Geometrie der Paulfalle ermöglicht. Dadurch sind keine Korrekturen für die Störung des Wärme- und Stofftransports durch Wandkontakte nötig. Zum ersten Mal werden hier Ergebnisse aus einer Temperaturmessung an einzelnen Wassertropfen mit spontaner Raman-Streuung vorgestellt. Neben der zeitlich gemittelten Temperaturmessung, werden auch Messergebnisse mit 1/3 s Auflösung gezeigt. Mit diesen erfolgreichen Messungen konnte im Rahmen ihrer Messunsicherheit die Annahmen zur Analogie von Wärme- und Stofftransport im vorigen Kapitel bestätigt werden.*

*Abschnitt 7.1 gibt eine Übersicht über bekannte Temperaturmesstechniken und stellt sie der hier angewendeten Methode gegenüber. Abschnitt 7.2 fasst die bisherigen experimentellen Untersuchungen des Wärmetransports von Tropfen im Bereich von Reynolds-Zahlen um 1 zusammen. Im Abschnitt 7.3 wird die Durchführung und die Auswertung des Experiments beschrieben. Anschließend werden die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert. Der Versuchsaufbau zur Aufnahme der Raman-Spektren wurde bereits in Abschnitt 3.2.7 gezeigt.*

## 7.1 Temperaturmesstechniken für Einzeltropfen

In diesem Abschnitt werden verschiedene Techniken vorgestellt und verglichen, die zur Temperaturmessung von Einzeltropfen in Frage kommen.

### Thermoelement

Die Messung mit einem Thermoelement im Kontakt mit dem Tropfen ist am einfachsten zu handhaben. Durch den Kontakt des Tropfens mit der Apparatur ist jedoch eine Beeinflussung des Tropfens nicht zu vermeiden. Je kleiner der Tropfen im Vergleich zum Thermoelement ist, um so stärker werden allerdings unter anderem die Form und der Wärme- und Stofftransport des Tropfens gestört. Thermoelemente zur Messung des Wärmetransports verdunstender Tropfen wurde zum Beispiel von Ranz und Marshall [10, 11], Schwarz und Smolik [58], Smolik et al. [14], Downing [59] und vielen anderen eingesetzt. Die Temperaturmessung in der vorliegenden Arbeit durch Raman-Streuung hat den Vorteil, dass erfolgreich Temperaturen gemessen wurden, ohne dass Korrekturen für die Störung des Wärme- und Stofftransports durch den Kontakt zum Tropfen nötig sind.

### Mie-Streuung

Wenn für die Tropfen die Zuordnung des Brechungsindex zu einer Temperatur bekannt und eindeutig ist, lässt sich die Temperatur von homogenen kugelförmigen Tropfen durch Auswertung der Mie-Streuung bestimmen. Dazu wird häufig der Winkel des ersten Regenbogens verwendet, der nur wenig von der Tropfengröße abhängt. Diese Methode wurde zum Beispiel von van Beeck et al. [60] eingesetzt. Für das Ziel der vorliegenden Arbeit, Tropfentemperaturen zwischen 0°C und 10°C zu messen, ist diese jedoch Methode nicht sinnvoll, da sich der Brechungsindex in diesem Bereich nur um 0,0003 ändert (siehe [61]), weil der Brechungsindex von flüssigem Wasser bei 0°C ein Maximum hat. Die von Duft und Leisner [61] erreichte Messunsicherheit von  $8 \cdot 10^{-5}$  entspricht dann einer Messunsicherheit von etwa 3 K für die Temperatur. Die Temperaturmessung der Mie-Streuung hat gegenüber der Raman-Streuung den Nachteil, dass die Mie-Theorie nur für kugelförmige und homogenen Tropfen gilt. Für andere Tropfen ist die Berechnung der Lichtstreuung unter Umständen sehr aufwändig oder noch nicht genügend untersucht. Einen Beitrag zur Erweiterung und Überprüfung dieser Theorien liefern die Untersuchungen im Kapitel 5. Für die Zukunft ist der Einsatz

von Femtosekundenpulsen, wie im Kapitel 4 vorgestellt, vielversprechend, da dadurch Interferenzeffekte teilweise verschwinden, die bei Beleuchtung mit monochromatischem Laserlicht bisher die Messunsicherheit des Regenbogenwinkels begrenzen [2].

## **Laserinduzierte Fluoreszenz und Phosphoreszenz**

Fluoreszenzspektren hängen in der Regel von der Temperatur ab, wobei entweder die Fluoreszenz des zu untersuchenden Materials oder eines zugegebenen Farbstoffs benutzt werden kann (wie z.B. in [62]). Li et al. [63] zum Beispiel untersuchten Fluoreszenz in Wasserdampf im infraroten Wellenlängenbereich, Berichte über Fluoreszenz von flüssigem Wasser sind jedoch nicht bekannt. Deshalb kommt für die laserinduzierte Fluoreszenz an Wassertropfen nur der Zusatz eines Farbstoffs in Frage. Laserinduzierte Phosphoreszenz unterscheidet sich im Wesentlichen von Fluoreszenz durch die längere Zeit zwischen Absorption und Emission. Sie wurde zum Beispiel von Brübach et al. [64] angewendet. Die Zugabe von Farbstoffen für die laserinduzierte Fluoreszenz oder Phosphoreszenz hat den Nachteil, dass dadurch möglicherweise die Verdampfung des Tropfens beeinflusst wird und sich während der Verdampfung die Farbstoffkonzentration ändern kann. In der vorliegenden Arbeit wurden durch die Verwendung der Raman-Streuung erfolgreich Temperaturen von Wassertropfen ohne Zusätze gemessen und dadurch deren mögliche Einflüsse auf die Verdampfung von vornherein ausgeschlossen.

## **Brillouin-Streuung**

Unter Brillouin-Streuung versteht man die inelastische Streuung von Licht an Schallwellen. Die Temperatur eines Materials lässt sich damit messen, da sie die Schallgeschwindigkeit beeinflusst. Theoretisch wurde Brillouin-Streuung in Einzeltropfen von Ching et al. [65] untersucht, zur Temperaturmessung an Einzeltropfen sind jedoch keine Ergebnisse bekannt. Der Grund ist vermutlich der Vorteil der Raman-Streuung, dass in der Regel die Streuquerschnitte größer sind und das inelastisch gestreute Licht durch die größere Frequenzverschiebung [66] leichter vom nicht-elastisch gestreuten zu trennen ist.

## **Thermochrome Flüssigkristalle**

Durch Analyse des von thermochromen Flüssigkristallen reflektierten Lichts lässt sich ihre Temperatur bestimmen. Thermochrome Flüssigkristalle gibt es auch in verkapselter Form, so dass sie auch in Flüssigkeiten wie Wasser verteilt eingesetzt werden können. Von Richards und Richards [4] wurden

sie in Einzeltropfen von 1 mm Durchmesser verwendet, die an einer Faser aufgehängt waren. Aufgrund der Größe der Kapseln ist diese Methode für Tropfen mit Durchmessern unter  $50\text{ }\mu\text{m}$ , die in dieser Arbeit untersucht wurden, ungeeignet.

## Infrarotthermographie

Das Spektrum und die Intensität von thermisch erzeugter Strahlung lässt Rückschlüsse auf die Temperatur des Strahlers zu. Tuckermann et al. [67] verwendeten ein Thermographie-System für Temperaturmessungen an Einzeltropfen zwischen 1 und 2 mm Durchmesser in einer akustischen Falle. Dieses System wertet die Gesamtintensität im Wellenlängenbereich zwischen 8 und  $12\text{ }\mu\text{m}$  aus. Die Infrarot-Thermographie bei Wasser misst die Oberflächentemperatur, da Wasser in diesem Wellenlängenbereich stark absorbiert. Im Gegensatz dazu wird mit der von mir angewandten Technik die Temperatur innerhalb des Tropfens gemessen. Temperaturmessungen durch Infrarot-Thermographie und spontane Raman-Streuung sind also komplementäre Techniken, deren Kombination bei nicht homogenen Temperaturverteilungen im Tropfen sehr interessant ist.

## Spontane Raman-Streuung

Die inelastische Streuung von Licht unter Wechselwirkung mit einzelnen Molekülschwingungen und -rotationen wird als Raman-Streuung bezeichnet. Bei der Streuung kann sowohl Licht größerer Wellenlänge (Stokes-Raman-Streuung) als auch Licht kleinerer Wellenlänge (Anti-Stokes-Raman-Streuung) entstehen. Die spontane Raman-Streuung wurde in der vorliegenden Arbeit zur Temperaturmessung verwendet, weil sie berührungslos ist, weil keine Zugabe von Farbstoffen nötig ist und weil sie auch für kleine Tropfen von unter  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser geeignet ist. Zur Temperaturmessung von Tropfen können verschiedene Bereiche des Streuspektrums verwendet werden.

In dieser Arbeit wurde wie bei Vehring und Schweiger [68] die OH-Streckschwingungsbande der Stokes-Raman-Streuung zur Temperaturmessung verwendet, weil sie die intensivste ist.

Vehring und Schweiger [68] zeigen eine Temperaturmessung zwischen  $36^\circ\text{C}$  und  $66^\circ\text{C}$  an einer Kette von Wassertropfen mit einem mittleren Durchmesser von  $35\text{ }\mu\text{m}$ . Sie verwenden das Verhältnis der Intensität der Raman-Streuung der OH-Streckschwingungen in den Bereichen von  $3038\text{ cm}^{-1}$  bis  $3425\text{ cm}^{-1}$  und von  $3425\text{ cm}^{-1}$  bis  $3600\text{ cm}^{-1}$ . Dafür wird eine Messgenauigkeit von  $\pm 1\text{ K}$  angegeben. Da sich die Tropfen in der Kette gegenseitig durch



den Dampf beeinflussen, sind die Messungen in der vorliegenden Arbeit besser geeignet, um die Eigenschaften einzelner Tropfen zu untersuchen.

Lübben et al. [69] verwenden statt der OH-Schwingungsbande der Stokes-Streuung das Intensitätsverhältnis zwischen Stokes- und Anti-Stokes-Streuung. Sie haben die Temperatur einzelner Schwefelsäure-Wasser-Partikel in einer optischen Falle zwischen 180 K und 300 K gemessen. Dazu wurde das Verhältnis der Intensitäten einer Schwefelsäure-Linie der Stokes- und der Anti-Stokes-Raman-Streuung bei  $440\text{ cm}^{-1}$  ausgewertet. Die Messung wurde für verdünnte Schwefelsäure sowohl an Partikeln von  $20\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser als auch in einem Behälter durchgeführt. Die Messgenauigkeit für Tropfen wurde mit  $\pm 10\text{ K}$  angegeben, falls optische Resonanzen im Tropfen zu vernachlässigen sind. Die Abhängigkeit der Wellenlänge der OH-Streckschwingungsbande des Wassers von der Temperatur wurde in meinen Untersuchungen zwar beobachtet, aber nicht zur Messung verwendet.

In dieser Arbeit wird die Abhängigkeit der Form der OH-Streckschwingungsbande von der Temperatur verwendet. Diese Abhängigkeit kann man in einem Modell erklären, das von zwei Arten von Wassermolekülen ausgeht, den über Wasserstoffbrücken gebundenen Wassermolekülen und den ungebundenen [70]: Da die Energie der Streckschwingungen im gebundenen Molekül größer ist, ist auch die Wellenlängenänderung bei der Raman-Streuung größer. Die Spektren der beiden Arten überlagern sich, ergeben aber nur ein gemeinsames Maximum, weil die Wellenlängenänderung nur gering ist. Da mit steigender Temperatur der Anteil der über Wasserstoffbrücken gebundenen Moleküle abnimmt, verringert sich auch ihr Beitrag zum Spektrum. Dadurch ändert sich die Form des Spektrums mit der Temperatur.

## Stimulierte Raman-Streuung

Bei ausreichend hohen Leistungsdichten des Lichts treten nichtlineare optische Prozesse wie die stimulierte Raman-Streuung auf, die die Streuung verstärken. Tropfen wirken als optische Resonatoren, so dass bei gleicher Laserleistung höhere Leistungsdichten auftreten können. Die Stimulierte Raman-Streuung entsteht dort durch die Energieverteilung der resonanten Moden hauptsächlich in der Nähe der Oberfläche. Damit wurden bereits Konzentrationsmessungen in Tropfen nahe der Oberfläche durchgeführt [71]. Temperaturmessungen sind auch denkbar, Ergebnisse dazu liegen allerdings nicht vor.

## 7.2 Messungen des Wärmetransports von Kugeln bei Reynolds-Zahlen um eins

Die Nusselt-Zahl als dimensionslose Größe, die den Wärmetransport beschreibt, wurde im Kapitel 6 bereits eingeführt und diskutiert. Im folgenden wird ein Überblick über bereits bekannte experimentelle Ergebnisse gegeben, die hier relevant sind:

Die experimentelle Bestimmung der Abhängigkeit der Nusselt-Zahl von der Reynolds-Zahl wurde von Ranz und Marshall [11], Smolik et al. [14], Schwarz und Smolik [58], Downing [59], Beard und Pruppacher [12], Yuen and Chen [72] und vielen anderen durchgeführt. Im Bereich von Reynolds-Zahlen in der Nähe von 1 liegen dazu jedoch an experimentellen Daten ausschließlich die in Abbildung 7.1 gezeigten von Smolik et al. und Yuge vor.

Smolik et al. [14] untersuchten Wassertropfen in Luft mit einem Durchmesser zwischen 0,7 mm und 1,4 mm bei Lufttemperaturen zwischen 294 K und 302 K. Die Tropfen wurden an einem Thermoelement aufgehängt, die Reynolds-Zahl lag zwischen 1,2 und 64, die Prandtl-Zahl betrug  $Pr = 0,73$ .

Yuge zeigt in [73] Ergebnisse für Nusselt-Zahlen von Kugeln bei Reynolds-Zahlen von 3,5 bis  $1,44 \cdot 10^5$ . Diese wurden mit festen Metallkugeln von 1 mm bis 6 mm Durchmesser in einem Windkanal gewonnen. Sie geben  $Pr = 0,715$  als Prandtl-Zahl an.

Da im Bereich der Reynolds-Zahlen  $Re$  von 0,1 bis 10 und Prandtl-Zahlen  $Pr$  um 0,7 nur wenige experimentell ermittelte Nusselt-Zahlen  $Nu$  für Kugeln vorliegen und diese zudem mit Messunsicherheiten über  $\pm 8\%$  behaftet sind und mit kontaktbehafteten Messmethoden gewonnen wurden, sind weitere Untersuchungen wie in dieser Arbeit sinnvoll.

In Abbildung 7.1 ist zur Orientierung auch die theoretisch hergeleitete Gleichung B.3 von Acrivos und Taylor [6] und der von Ranz und Marshall [10, 11] gewonnene Zusammenhang gezeigt, der aus Gleichung B.6 durch Ersetzen von  $Sh$ ,  $Sc$  und  $K$  durch  $Nu$ ,  $Pr$  bzw. 0,6 hervorgeht.

Meine experimentellen Ergebnisse der Temperaturmessung werden in Abschnitt 7.3.2 gezeigt.

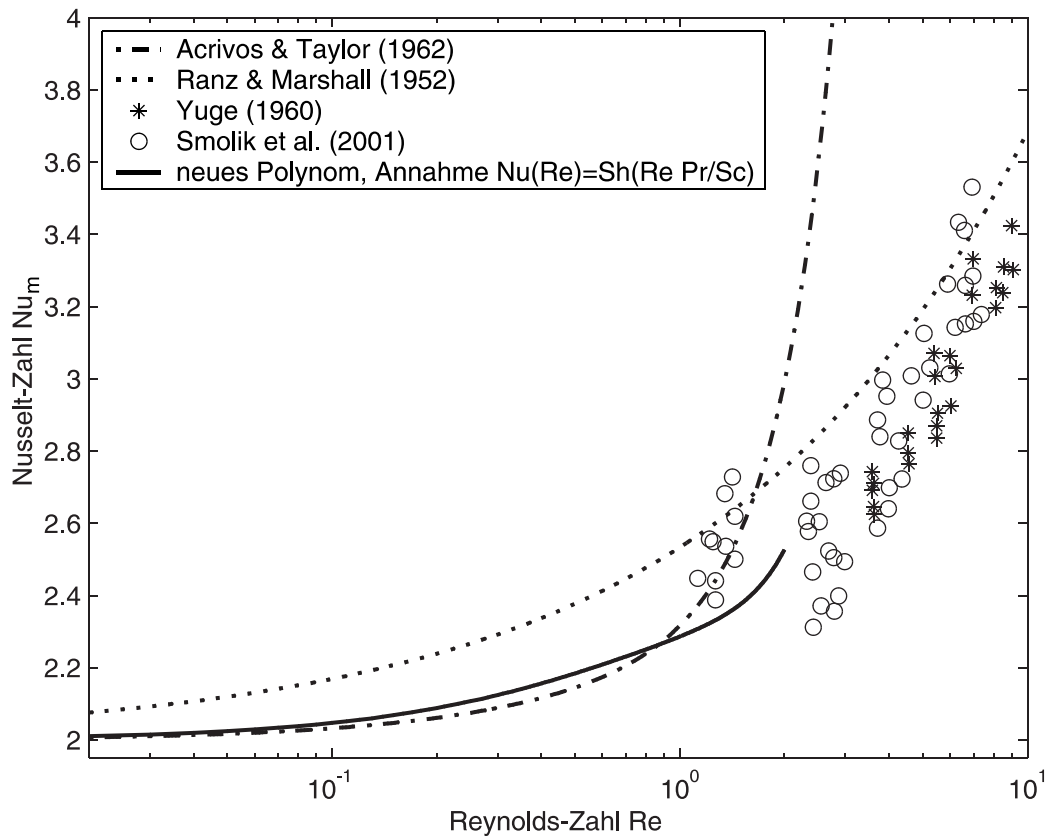


Abbildung 7.1: Neue und bekannte Ergebnisse zur Abhängigkeit der Nusselt-Zahl von der Reynolds-Zahl. Die bekannten Ergebnisse wurden für die Prandtl-Zahl 0,70 umgerechnet. Die neuen Ergebnisse gehen aus Kapitel 6 zusammen mit der Annahme  $Nu(Re) = Sh(Re Pr/Sc)$  hervor, wobei  $Sh$  die Sherwood-Zahl,  $Pr$  die Prandtl-Zahl und  $Sc$  die Schmidt-Zahl ist (siehe Anhang A).

## 7.3 Experimentelle Untersuchung von Wassertropfen in Stickstoff

### 7.3.1 Temperaturkalibrierung

Die Temperaturänderung abhängig vom Verhältnis der Intensität der Raman-Streuung bei 584 nm und 579 nm Wellenlänge wurde unter Beleuchtung durch einem Laser mit 488 nm Wellenlänge wie folgt kalibriert: Eine wärme-gedämmte Küvette wurde mit einem Eis-Wasser-Gemisch gefüllt und der Laserstrahl auf die Mitte der Küvette fokussiert. Nachdem das Eis geschmolzen war, erwärmte sich das Wasser innerhalb von etwa 5 Stunden von 0°C bis auf 22°C. Die Temperatur wurde alle 15 s mit Hilfe eines 100-Ohm-Platin-Widerstands gemessen. Das gestreute Licht wurde in gleicher Weise wie bei

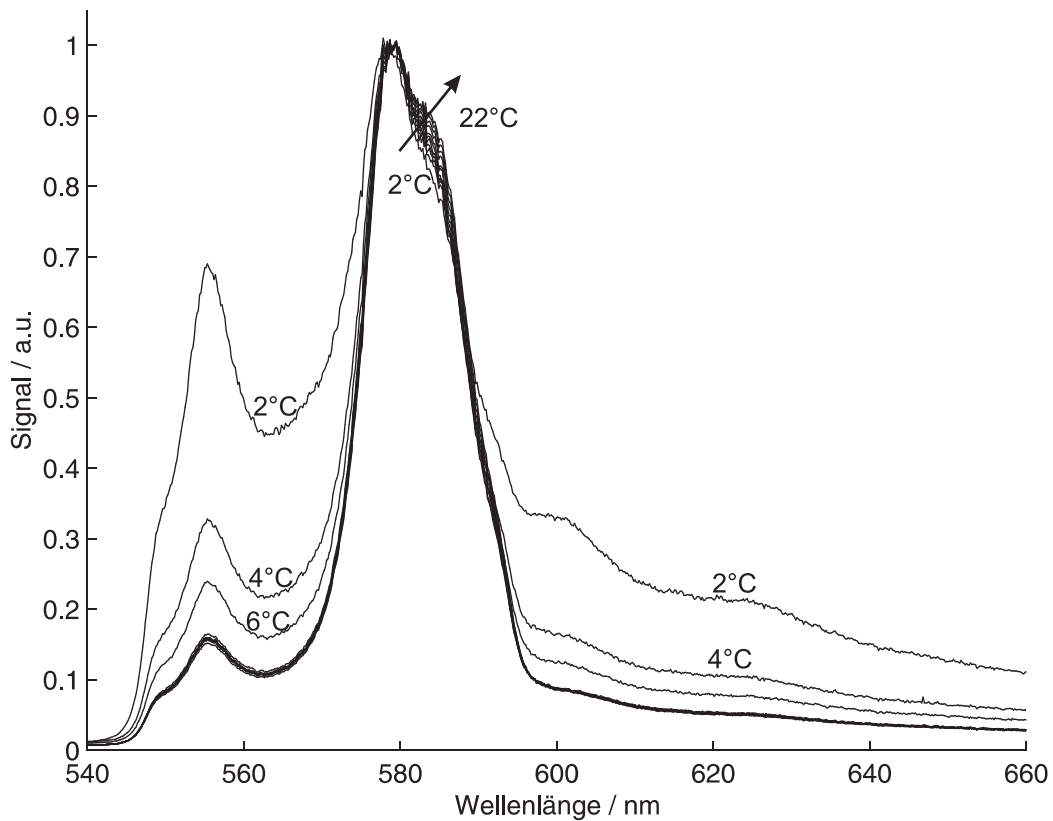


Abbildung 7.2: Unbearbeitete Spektren von Wasser in einer Küvette bei Temperaturen zwischen 2°C und 22°C bei einer Beleuchtung mit Laserlicht von 488 nm Wellenlänge. Das Maximum wurde auf eins normiert.

der Messung an Tropfen mit dem Spektrograph analysiert. Die Winkel, insbesondere der Winkel des Interferenzfilters, wurden jedoch zwischen den Messungen beim Nejustieren um wenige Grad verändert. Die Belichtungszeit des CCD-Chips betrug jeweils 60 s. Anschließend wurden die Spektren adi-ert, die jeweils in Temperaturbereichen von 2 K aufgenommen wurden. Das Ergebnis eines Messdurchgangs ist in Abb. 7.2 dargestellt. Das Maximum der Kurven wurde auf 1 normiert. Die Spektren lassen sich wie folgt interpretieren: Das Hauptmaximum zwischen 570 nm und 595 nm entsteht durch das Licht der Raman-Streuung. Dem überlagert ist ein Spektrum, das in diesem Bereich mit steigenden Wellenlängen exponentiell abfällt und durch Fluoreszenz des Mantels um die Küvette entsteht. Bei niedrigen Temperaturen ist das Licht der Raman-Streuung demgegenüber schwächer, weil Kondensation der Raumfeuchte an der Küvette aufgetreten ist und das Kondensat

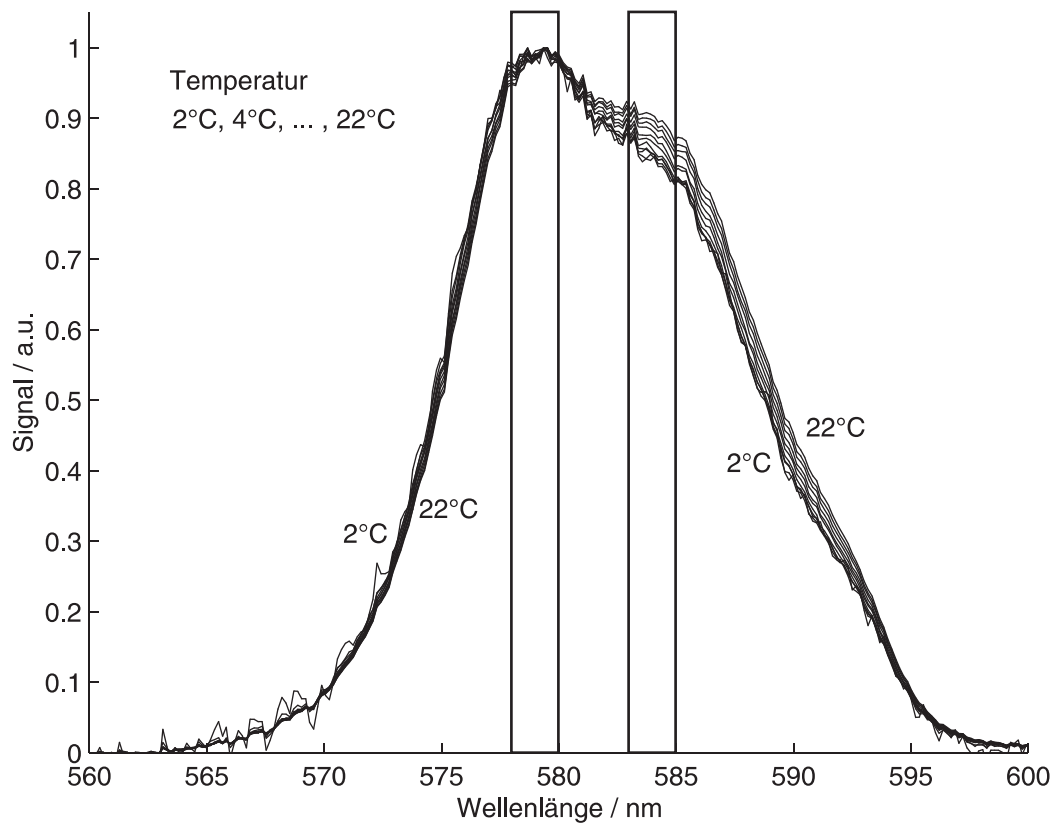


Abbildung 7.3: Bearbeitete Spektren von Wasser in einer Küvette bei Temperaturen zwischen 2°C und 22°C und bei einer Beleuchtung mit Laserlicht von 488 nm Wellenlänge. Das jeweils mit einem Faktor multiplizierte Spektrum der leeren Küvette und eine Konstante wurden von den Spektren in Abbildung 7.2 abgezogen. Das Maximum wurde auf eins normiert.

die Abbildung auf den Eingangsspalt des Spektrographen beeinträchtigt. Das Spektrum ist als Produkt mit der Transmission (siehe Abbildung 7.5) durch den Interferenzfilter entstanden. Dies erklärt die Kante bei 550 nm, das daneben liegende Maximum und die Unebenheiten in der Kurve über 600 nm.

Nach dem Entleeren der Küvette wurde ebenfalls das Spektrum aufgenommen. Von den Spektren in Abb. 7.2 wurde dieses jeweils mit einem Faktor und einer Konstante abgezogen, die so gewählt sind, dass die Intensität unterhalb 562 nm und oberhalb 600 nm minimal wird. Das Ergebnis ist in Abb. 7.3 zu sehen. Die Kurven gehören von links nach rechts zu steigenden Temperaturen von 2°C, 4°C, 6°C, ... 22°C.

Wie auch von Walrafen et al. [74] gemessen, wird hier mit zunehmender

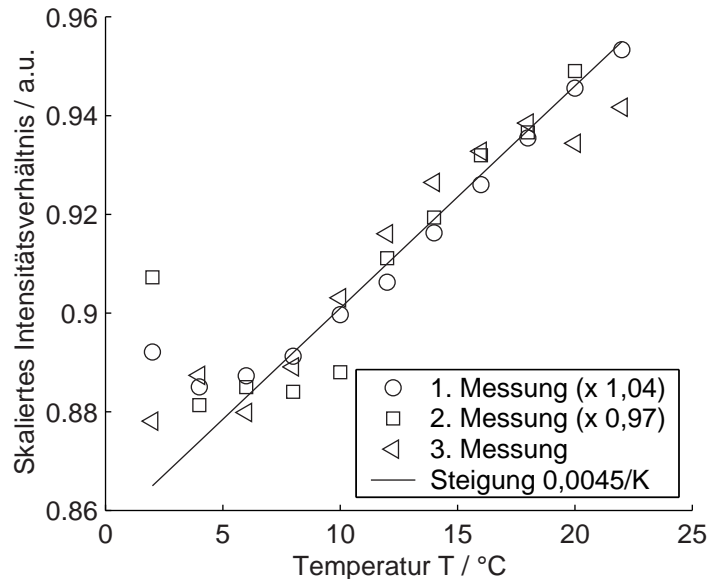


Abbildung 7.4: Temperaturkalibrierung. Verhältnis der Intensität im Wellenlängenbereich 583 nm bis 585 nm zur Intensität im Bereich 578 nm bis 580 nm (siehe Abbildung 7.3). Die Ergebnisse der drei Messungen wurden wie angegeben skaliert, so dass sich eine gemeinsame Gerade anpassen lässt.

Temperatur die Intensität zwischen 583 nm und 585 nm relativ zur Intensität zwischen 578 nm und 580 nm größer. Allerdings sind hier die Verhältnisse kleiner, was durch den Einfluss des Interferenzfilters erklärt werden kann.

Die Kalibrierung wurde zweimal wiederholt und jeweils das Verhältnis  $R$  der Intensität im Wellenlängenbereich 583 nm bis 585 nm zur Intensität im Bereich 578 nm bis 580 nm bestimmt. Dies ist in Abb. 7.4 gezeigt. Die Werte aus jedem Durchgang wurden mit einem Faktor korrigiert, sodass die Abweichung minimal wird. Die Abweichung um diesen Faktor lässt sich durch das Neujustieren der Optik zwischen den Messungen erklären: Die Transmissionskurve des Interferenzfilters zeigt laut Datenblatt des Herstellers mehrere Minima und Maxima (Abbildung 7.5) und hängt vom Einfallswinkel ab. Dadurch ändert sich zwischen den Durchgängen auch die Transmission in den Wellenlängenbereichen für die Temperaturbestimmung.

An die Punkte in Abbildung 7.4 wurde eine Gerade angepasst. Deren Steigung von  $0,0045 \text{ K}^{-1}$  wird im nächsten Abschnitt für die Temperaturbestimmung an den Tropfen verwendet.

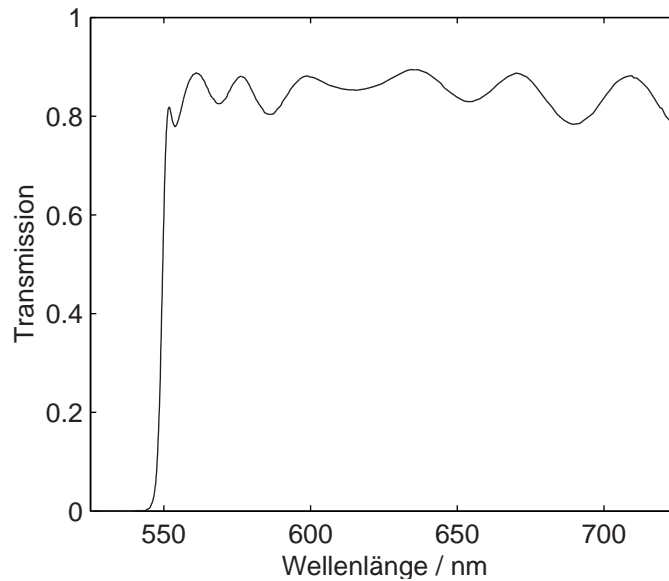


Abbildung 7.5: Transmissionskurve des Interferenzfilters nach Angaben des Händlers (Thorlabs).

### 7.3.2 Messung der Tropfentemperatur bei verschiedenen Gasgeschwindigkeiten

Abbildung 7.6 zeigt die Tropfentemperatur als Funktion der Reynolds-Zahl  $Re$ . Als Kreuze sind Einzelmesswerte dargestellt die wie folgt zustande kommen. Der verwendete Versuchsaufbau wurde bereits in Abschnitt 3.2.7 vorgestellt. Zur Messung wird die Kammer der Falle 60 s lang mit Stickstoff gespült. Anschließend werden 15 s lang Tropfen aufeinanderfolgend verdampft und danach wird für 15 s die Kammer mit Stickstoff gespült um die relative Feuchte in der Falle wieder auf ein Minimum zu reduzieren. Diese beiden Schritte werden während 5 min abwechselnd wiederholt, bevor der gesamte Vorgang mit einem Stickstoff-Wasserdampf-Gemisch wiederholt wird. Die Messung in feuchtem Stickstoff wird stets in ruhendem Gas durchgeführt, in trockenem Stickstoff wurde die Gasgeschwindigkeit zwischen 0 m/s, 0,035 m/s, 0,16 m/s und 0,27 m/s verändert. Die Umgebungstemperatur liegt zwischen 20°C und 25°C. Die Verdunstungsrate  $\beta_D$  der Tropfen in ruhendem Stickstoff-Wasserdampf-Gemisch betrug stets weniger als  $1,5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ . Damit kann man aufgrund theoretischer Berechnungen annehmen, dass die Tropfentemperatur weniger als 1,8 K von der Umgebungstemperatur abweicht. Das erlaubt, die Tropfen in ruhendem Stickstoff-Wasserdampf-Gemisch als Referenz zu verwenden und aus der Kalibrierung im Abschnitt 7.3.1 ausschließlich die Steigung zu verwenden.

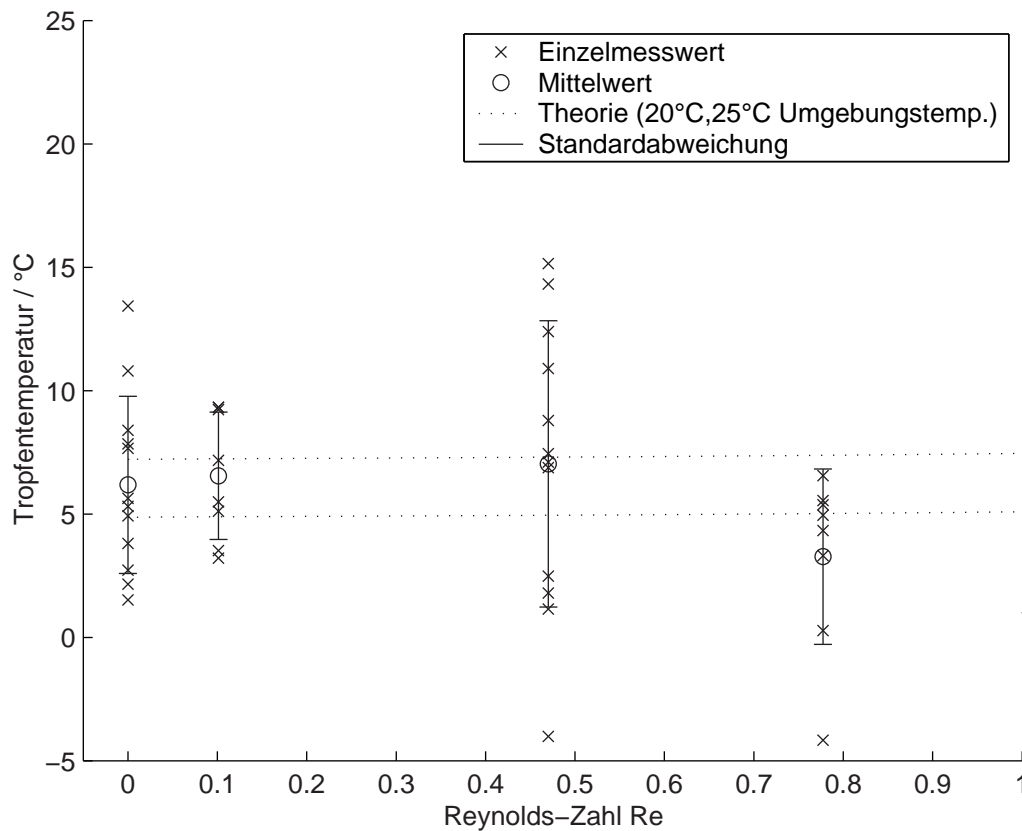


Abbildung 7.6: Temperaturen von Wassertropfen während der Verdunstung in strömendem Stickstoff. Gepunktet: Theoretische Berechnung für 20°C und 25°C Umgebungstemperatur anhand des experimentell bestimmten Polynoms für  $Sh_m(Re)$  und der Näherung  $Nu(Re) = Sh(Re Pr/Sc)$  aus dem vorhergehenden Kapitel, wobei  $Pr$  die Prandtl-Zahl und  $Sc$  die Schmidt-Zahl ist.

Abbildung 7.6 zeigt die Tropfentemperatur als Funktion der Reynolds-Zahl. Die Reynolds-Zahl wurde aus der Gasgeschwindigkeit der Umgebung und einer mittleren Tropfengröße von  $42\text{ }\mu\text{m}$  berechnet. Die Einzelmesswerte, die wie oben beschrieben gewonnen wurden, sind als Kreuze dargestellt. Deren Mittelwerte und deren Standardabweichung sind für jede Reynolds-Zahl separat als Kreise eingezeichnet. Aus der Sherwood- und Nusselt-Zahl als Funktion der Reynolds-Zahl, die als Polynom im vorigen Kapitels mit der Annahme der Gleichungen 6.18 gewonnenen wurden, ergibt sich bei einer Umgebungstemperatur von 20°C und 25°C die untere bzw. die obere gepunktete Linie. Sie steigt in dem dargestellten Bereich mit wachsenden Reynolds-Zahlen um weniger als 1 K. Nimmt man sogar  $Sh = Nu$  an, ist die



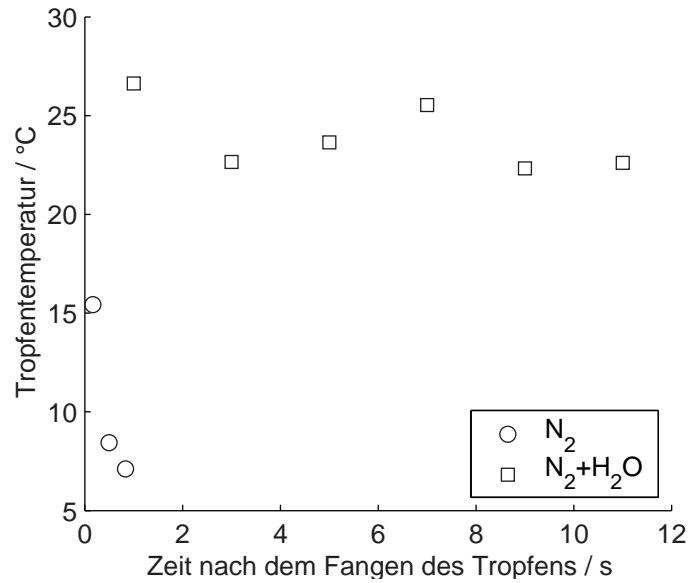


Abbildung 7.7: Gemessener zeitlicher Temperaturverlauf der verdampfenden Tropfen in reinem Stickstoff (Kreise) und der Referenztropfen in feuchtem Stickstoff (Quadrate).

theoretisch vorhergesagte Temperatur unabhängig von der Reynolds-Zahl.

Die mittleren Temperaturen stimmen innerhalb der Fehlergrenzen gut mit der Vorhersage überein. Die Näherung  $Nu(Re) = Sh(RePr/Sc)$  wurde im Rahmen der Messunsicherheit bestätigt.

Der zeitliche Temperaturverlauf wurde ebenfalls untersucht, indem 2 s bzw. 0,333 s Integrationszeit verwendet wurde. Anschließend wurden diejenigen Spektren summiert, die bei gleichem Tropfenalter aufgenommen wurden. Dabei wurde die gemessene Gesamtintensität als Kriterium verwendet, wann ein neuer Tropfen gefangen wurde. Wie Abbildung 7.7 zeigt, liefert dies für Tropfen in ruhendem trockenem Stickstoff Temperaturen von 15° C, 8° C und 7° C. Bei Verdampfung in feuchtem Gas ist wie zu erwarten keine signifikante Temperaturänderung zu sehen. In trockenem Gas liegt die Temperatur in der ersten drittel Sekunde höher. Gemäß Berechnung von Al Zaitone [55] und Zhang and Davis [30] war zu erwarten, dass die Temperatur im gesamten Tropfenvolumen 100 ms nach dem Einschießen bis auf 1 K die Gleichgewichtstemperatur erreicht hat. Für Abbildung 7.6 ist angesichts der Messunsicherheit eine Mittelung trotzdem gerechtfertigt.

## 7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde eine Übersicht über Temperaturmesstechniken für Einzeltropfen gegeben: Die in dieser Arbeit verwendete Methode basierend auf der Raman-Streuung zeichnet sich dadurch aus, dass die Temperatur im Tropfeninneren berührungslos gemessen wird, so dass keine Wandkontakte den Stoff- und Wärmetransport stören. Es werden außerdem keine Farbstoffe zugegeben, die die Tropfeneigenschaften verändern und die Absorption des Laserlichts erhöhen. Zum ersten Mal wurden hier auf Raman-Streuung basierende Temperaturmessergebnisse an einzelnen Wassertropfen vorgestellt. Dies wurde mit Hilfe der neu entwickelten elektrodynamischen Falle erreicht, die im Teil I beschrieben wurde.

Ziel war es, anhand der Tropfentemperatur die Annahme experimentell zu überprüfen, dass hier näherungsweise  $Nu(Re) = Sh(Re Pr/Sc)$  gilt. Diese Annahme konnte innerhalb der angegebenen Temperaturmessunsicherheit bestätigt werden. Die Messunsicherheit ist zwar größer als bei den Messungen mit Kontakt zum Tropfen wie bei Smolik et al. [14], aber durch weitere Optimierung lässt sich die Messunsicherheit der Temperaturmessung mit Raman-Streuung von durchschnittlich  $\pm 4$  K weiter reduzieren. Die zeitliche Auflösung beträgt 1/3 s. Alle zuvor bekannten experimentellen Ergebnisse für Nusselt-Zahlen von Einzeltropfen in Strömungen basieren auf kontaktbehafteten Temperaturmessungen [11, 73, 14].

Die in diesem und dem vorigen Kapitel gezeigten Messungen leisten einen wichtigen Beitrag zur genaueren Bestimmung des Stoff- und Wärmetransports von Tropfen und damit zur Verbesserung der Modellierung von Sprays und Aerosolen und schließlich unseres Klimas.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung und Ausblick

### Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde von mir eine neue Geometrie einer elektrodynamischen Falle entwickelt (Kapitel 2) und für zahlreiche Messungen an Tropfen erfolgreich eingesetzt. Sie bietet gegenüber der ursprünglichen Geometrie wesentlich größeren optischen Zugang von  $360^\circ$  horizontal und  $36^\circ$  vertikal. Anhand von Berechnungen des elektrischen Felds mit der Ersatzladungsmethode konnte ich erfolgreich zeigen, dass die Tropfenstabilität deutlich höher ist als bei einer Geometrie aus zwei Ringen bei vergleichbaren Dimensionen und elektrischen Spannungen. Die Berechnungen zeigen außerdem, dass durch Verringern des Abstands zwischen den oberen und unteren Elektroden die Tropfenstabilität in axialer Richtung zugunsten der radialen Richtung verringert werden kann. Damit lässt sich die Stabilität flexibel an die experimentellen Anforderungen anpassen. Damit steht für die Zukunft ein leistungsfähiges wissenschaftliches Instrument zur stabilen Fixierung von Tropfen in Gasströmungen zur Verfügung.

Diese neue elektrodynamische Falle wurde mit Erfolg im Experiment eingesetzt, um Durchmesser, Brechungsindizes, Konzentrationen und Dichten von Tropfen berührungslos durch Streulichtmessungen zu bestimmen (Kapitel 3). Außerdem wurden mit der Falle Reibungskräfte und Gasgeschwindigkeiten bestimmt. Damit wurde zur Kalibrierung die Gasgeschwindigkeit als Funktion des Volumenstroms bestimmt. Die sehr gute Übereinstimmung mit einer quadratischen Abhängigkeit, wie sie in einer laminaren Rohrströmung zu erwarten ist, spricht für verlässliche Strömungseigenschaften der Falle. Der große optische Zugang der Falle ermöglicht alle diese Techniken flexibel zu kombinieren.

Mit Hilfe dieser Falle wurde zum ersten Mal von Bakic et al. [2] expe-

rimentell nachgewiesen, dass optische Strukturresonanzen in Wassertropfen von etwa  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser verschwinden, wenn man von einer Beleuchtung mit einem cw-Laser zu einem Femtosekundenpuls-Laser übergeht (Kapitel 4). Dies eröffnet neue Möglichkeiten für die optische Spray-Messtechnik: Durch das Verschwinden der optischen Strukturresonanzen lässt sich einer Intensität eindeutig eine Tropfengröße zuordnen. Dies ist vorteilhaft, da man so prinzipiell mit einer einzelnen Aufnahme eines Sprays alle Tropfengrößen gleichzeitig bestimmen kann.

Auch die Untersuchungen an Tropfen mit einem kugelförmigen exzentrischen Einschluss tragen zur Entwicklung optischer Messtechniken bei. Hier konnte ich zum ersten Mal durch Analyse der Winkelabhängigkeit des Streulichts die Geometrie eines Wassertropfens von etwa  $50\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser und einer enthaltenen exzentrischen Luftblase erfolgreich bestimmen. Für die Durchmesser und den Abstand von Tropfen und Blase wurde eine Messunsicherheit von  $\pm 1,5\text{ }\mu\text{m}$  erreicht. Der gemessene Durchmesser der Luftblase wurde durch die Volumenänderung beim Zerplatzen überprüft. Die Daten zeigen, dass sich die Blase innerhalb des Tropfens nach oben bewegt und während 300 ms ein dünner Flüssigkeitsfilm von weniger als  $1\text{ }\mu\text{m}$  Dicke besteht, bevor der Einschluss den Tropfen verlässt. Der große optische Zugang der Falle ermöglichte, das Streulicht dieser inhomogenen Tropfen in einem Winkelbereich von  $120^\circ$  aufzunehmen. Dies ist besonders interessant, da bis dahin keine experimentellen Daten zur Überprüfung der theoretischen Berechnungen von Borghese et al. [3] vorlagen.

Einen Schwerpunkt dieser Arbeit bilden die Untersuchungen zum Stoff- und Wärmetransport bzw. die Bestimmung der Sherwood- und Nusselt-Zahl von Tropfen in Strömungen bei Reynolds-Zahlen um eins (Kapitel 6 und 7). Hier wurden Wassertropfen in strömendem Stickstoff bei einer Umgebungstemperatur von  $22^\circ\text{C}$  und einem Druck von  $10^5\text{ Pa}$  untersucht. Da bisher bekannte theoretische Berechnungen der Sherwood-Zahl als Funktion der Reynolds-Zahl in diesem Bereich stark voneinander abweichen und die experimentellen Daten deutliche Messunsicherheiten bzw. Streuungen aufweisen, waren weitere Messungen sinnvoll. Die eigenen Arbeiten zeichnet die große Zahl von 700 berührungslos untersuchten Tropfen aus. Dabei wurde eine Messunsicherheit von  $\pm 0,015$  für die Sherwood-Zahl erreicht, die geringer ist als bei allen bisherigen Untersuchungen. Anhand der Ergebnisse werden die numerischen Berechnungen von Woo und Hamielec [8] empfohlen und die Gleichung von Acrivos und Taylor [6] als analytische Näherung für Reynolds-Zahlen unter eins. Diese Ergebnisse können dazu beitragen, Modelle für Sprays und Aerosole zu verbessern, die heute unverzichtbar bei der Optimierung von Verbrennungs- und Trocknungsprozessen und bei der Vorhersage unseres Klimas sind.

Zusätzlich wurde die Temperatur der Tropfen gemessen (Kapitel 7). Dabei konnte ich erstmalig die Temperatur von Einzeltropfen mit Hilfe von spontaner Raman-Streuung messen. Unter allen Untersuchungen zum Einfluss der Strömung auf die Verdampfung von Einzeltropfen ist diese die erste, bei der Tropfentemperaturen berührungslos gemessen wurden. Im Rahmen der erreichten Messunsicherheit von  $\pm 4\text{ K}$  konnte die Annahme  $Nu(Re) = Sh(Re Pr/Sc)$  zur Temperaturberechnung im Kapitel 6 bestätigt werden.

## Ausblick

Mit der neu entwickelten elektrodynamischen Falle steht ein leistungsfähiges Instrument zur berührungslosen Fixierung von Einzeltropfen zur Verfügung. Durch den erweiterten optischen Zugang lassen sich wie gezeigt verschiedene optische Messtechniken flexibel kombinieren. Bezüglich der technischen Ausstattung der Falle ist es für zukünftige Untersuchungen wünschenswert, auch die Temperatur der Elektroden und des einströmenden Gases zu kontrollieren. Um bei höheren Gasgeschwindigkeiten bzw. Reynolds-Zahlen messen zu können, ist ein Gleichspannungsverstärker mit höherer Ausgangsspannung nötig. Da die Tropfen in diesem Fall auch schneller verdunsten, wird vermutlich auch eine Regelschleife für die Tropfenposition mit einer kürzeren Verzögerungszeit benötigt. Dies kann durch Umstellung auf einen analogen PID-Regler erreicht werden.

Im Bereich der Lichtstreuung von Femtosekundenpulsen ist der nächste Schritt die Überprüfung der intensitätsbasierten Tropfengrößenbestimmung mit einer herkömmlichen Technik.

Für weitere interessante Versuche zur Lichtstreuung an Wassertropfen mit einem exzentrischen Lufteinschluss ist es sinnvoll, die Entstehung dieser Tropfen in dem Druckkopf des Tintenstrahldruckers näher zu untersuchen, um ihre Erzeugung besser steuern zu können. Für den Vergleich mit theoretischen Berechnungen zur Lichtstreuung ist der Übergang zu noch kleineren Tropfen sinnvoll, bei denen die Unterschiede zur geometrischen Optik noch deutlicher werden.

Nachdem hier erfolgreich die Sherwood-Zahl von Tropfen in Strömungen bei Reynolds-Zahlen um eins bei einer festen Schmidt-Zahl, also bei einem festen Verhältnis von kinematischer Viskosität und Diffusionskoeffizient bestimmt wurde, kann das nächste Ziel sein, die Abhängigkeit von der Schmidt-Zahl näher zu untersuchen. Dies kann durch Wechsel des Gases geschehen oder durch Variation der Temperatur. Auch Messungen bei höheren Reynolds-Zahlen sind nach einer technischen Erweiterung der Falle möglich.

Die in dieser Arbeit verfügbaren technischen Möglichkeiten erlaubten die

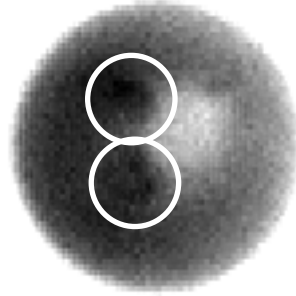


Abbildung 8.1: Zwei Chlorella-Algenzellen in einem Tropfen aus Nährlösung und Glycerol in der elektrodynamischen Falle. Beleuchtung mit einer Glühlampe. Dargestellt ist der Blau-Kanal der RGB-Farbkamera.

Bestimmung der Temperatur mit einer Messunsicherheit von  $\pm 4\text{ K}$ , die in Zukunft jedoch vermutlich weiter verringert werden kann. Weitere Untersuchungen sind wünschenswert, da dieses Verfahren berührungslos ist, keine Indikator- oder Farbstoffzugabe erfordert und weil es zusätzliche Informationen zur Oberflächentemperaturmessung mit Infrarotthermometrie liefern kann.

Obwohl sich diese Arbeit auf Versuche an Tropfen konzentrierte, ist die Falle auch geeignet um Partikel zu untersuchen. Die Biologie bietet ein Anwendungsfeld, in dem die elektrodynamische Falle bisher wenig genutzt wurde. Abbildung 8.1 zeigt Aufnahmen aus der neuen elektrodynamischen Falle, in der ein Tropfen aus Glycerol und einer Nährlösung fixiert wurde, in der Chlorella-Algenzellen schwimmen. Zwei Algenzellen sind in der Abbildung mit weißen Kreisen markiert. Die Zellen haben einen typischen Durchmesser von  $5\text{ }\mu\text{m}$ . Die Aufnahme zeigt den Blau-Kanal einer RGB-Farbaufnahme unter Weißlichtbeleuchtung mit einer Glühlampe. Da das Chlorophyll der Zelle besonders blaues Licht absorbiert, treten die Zellen bzw. die Chloroplasten als dunkle Flecken hervor. Diese Bilder zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, auch biologische Proben in einer elektrodynamischen Falle zu untersuchen. Dabei kann der Tropfen als eine Art von Mikrokosmos dienen oder an einzelnen Tropfen könnten Membraneigenschaften studiert werden.

Diese Zusammenfassung und der Ausblick machen deutlich, dass hier ein wichtiger Beitrag zur Weiterentwicklung wissenschaftlicher Instrumente, optischer Messtechniken und zur Bestimmung von Eigenschaften des Stoff- und Wärmetransports geleistet wurde. Gleichzeitig ergeben sich neue interessante Fragestellungen und neue Anwendungsbereiche der elektrodynamischen Falle.

# Anhang A

## Verwendete Symbole

Symbol		Einheit
$a$	Temperaturleitfähigkeit, Temperaturleitwert (Kapitel 6 und 7), $a = k/(c_p \rho)$	$\text{m}^2/\text{s}$
$a$	Abstand zw. Tropfen- und Blasenoberfläche (Kapitel 5)	$\text{m}$
$a_z$	Betriebsparameter der elektrodynamischen Falle	1
$A_0$	Oberfläche, über die der Stoff- oder Wärmetransport gemittelt wird	$\text{m}^2$
$c_p$	Wärmekapazität pro Masse	$\text{J}/(\text{K kg})$
$c$	Stoffmengenkonzentration des Gemischs, $c = c_A + c_B$	$\text{mol}/\text{m}^3$
$c_1$	$c_1 = dU/dz^2$ an der Stelle $r = 0$ und $z = 0$ in der Falle	$\text{V}/\text{m}^2$
$c_A$	Stoffmengenkonzentration = molare Konzentration	$\text{mol}/\text{m}^3$
$C_{\text{sca}}$	Streuquerschnitt für die Mie-Streuung	1
$d$	Tropfenradius, $d = 2R$	$\text{m}$
$d_0$	Tropfenradius zum Zeitpunkt $t_0$	$\text{m}$
$\vec{e}_n$	Einheitsvektor senkrecht zur Oberfläche	1
$\hat{\text{div}}$	Divergenz-Operator in dimensionslosen Koordinaten, $\hat{\text{div}} = L \text{div}$	1
$D$	Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2/\text{s}$
$\vec{E}, E$	elektrischer Feldstärkevektor bzw. sein Betrag	$\text{V}/\text{m}$
$f$	beliebige Funktion	1
$F_{\text{drag}}$	Widerstandskraft	$\text{N}$
$g$	Erdbeschleunigung	$\text{m}/\text{s}^2$
$h_A$	Verdampfungswärme des Stoffes A pro Masse	$\text{J}/\text{kg}$
$\hat{\text{grad}}$	Gradient-Operator in dimensionslosen Koordinaten, $\hat{\text{grad}} = L \text{grad}$	1
$(\hat{\text{grad}} \hat{\rho}_A)_S$	Gradient $\hat{\text{grad}} \hat{\rho}_A$ an der Oberfläche	1

Symbol		Einheit
$\vec{J}_A^*$	Vektor der Stoffmengenstromdichte des Stoffes A relativ zu $\vec{v}^*$ , $\vec{J}_A^* = \rho_A(\vec{v}_A - \vec{v}^*)$	mol/m <sup>2</sup> s
$\vec{J}_A$	Vektor der Stoffmengenstromdichte des Stoffes A relativ zu $\vec{v}$ , $\vec{J}_A = \rho_A(\vec{v}_A - \vec{v})$	mol/m <sup>2</sup> s
$\vec{j}_A^*$	Vektor der Massenstromdichte des Stoffes A relativ zu $\vec{v}^*$ , $\vec{j}_A^* = \rho_A(\vec{v}_A - \vec{v}^*)$	kg/m <sup>2</sup> s
$\vec{j}_A$	Vektor der Massenstromdichte des Stoffes A relativ zu $\vec{v}$ , $\vec{j}_A = \rho_A(\vec{v}_A - \vec{v})$	kg/m <sup>2</sup> s
$\vec{J}_{AS}^*, \vec{J}_{AS}, \vec{j}_{AS}^*, \vec{j}_{AS}$	entsprechende Werte an der Tropfenoberfläche	
$k$	Wärmeleitfähigkeit = thermische Leitfähigkeit = Wärmeleitzahl	W/(K m)
$L$	charakteristische Länge	m
$m$	Masse	kg
$M_A$	Molmasse des Stoffes A	kg/mol
$n$	Brechungsindex	1
$n_o, n_i$	Brechungsindex der Tropfens bzw. der Blase	1
$\vec{n}_{AS}$	Vektor der Massenstromdichte des Stoffes A an der Tropfenoberfläche, $\vec{n}_A = \vec{j}_A + \rho_A \vec{v}$	kg/m <sup>2</sup> s
$Nu$	Nusselt-Zahl (dimensionslose Kennzahl für den Wärmetransport durch Wärmeleitung)	1
$\hat{p}$	dimensionsloses Druckfeld, $\hat{p} = p/(\rho v^2/2)$	1
$Pr$	Prandtl-Zahl, $Pr = \nu/a$	1
$q, q_{el}$	elektrische Ladung	C
$q_z$	Betriebsparameter der elektrodynamischen Falle	1
$\vec{q}_S$	Vektor der Wärmestromdichte durch Wärmeleitung	J/(m <sup>2</sup> s)
$Q$	Volumenstrom	m <sup>3</sup> /s
$Q_{sca}$	Streueffizienzfaktor für die Mie-Streuung	1
$R$	Tropfenradius $R = d/2$	m
$R_B$	Radius der Blase	m
$Re$	Reynolds-Zahl $Re = vL\rho/\eta$	1
$Sh$	Sherwood-Zahl (dimensionslose Kennzahl für den Stofftransport durch Diffusion)	1
$Sc$	Schmidt-Zahl $Sc = \nu/D$	1
$r$	Zylinderkoordinate	m
$t$	Zeit	s
$T$	Temperaturfeld	K



Symbol		Einheit
$\hat{T}$	dimensionsloses Temperaturfeld $\hat{T} = (T - T_\infty)/(T_S - T_\infty)$	1
$U_{\text{DC}}$	Gleichspannung zwischen oberer und unterer Innenelektrode	V
$\vec{v}$	Geschwindigkeitsvektor, $\vec{v} = (\rho_A \vec{v}_A + \rho_B \vec{v}_B)/\rho$	m/s
$\vec{v}^*$	Geschwindigkeitsvektor, $\vec{v}^* = (c_A \vec{v}_A + c_B \vec{v}_B)/c$	m/s
$v$	charakteristische Geschwindigkeit oder Geschwindigkeit fern vom Tropfen	m/s
$\vec{v}_A, \vec{v}_B$	mittlere Geschwindigkeit der Teilchen des Stoffes A bzw. B	m/s
$\hat{v}$	dimensionsloses Geschwindigkeitsfeld $\hat{v} = \vec{v}/v$	1
$X$	Größenparameter	1
$x_{\text{OE}}$	x-Koordinate in der Objektebene	m
$\vec{x}$	Ortsvektor	m
$\alpha, \beta$	Winkel zwischen Interferenzstreifen des Streubilds	rad
$\beta_d$	Parameter im $d^2$ -Gesetz: $d(t) = \sqrt{d_0 + \beta_D(t - t_0)}$	m <sup>2</sup> /s
$c_A, c_B$	Stoffmengenkonzentration des Stoffes A bzw. B	mol/m <sup>3</sup>
$\Delta c_A$	charakteristische Differenz der Stoffmengenkonzentration des Stoffes A	mol/m <sup>3</sup>
$\Delta T$	charakteristische Temperaturdifferenz	K
$\Delta \rho_A$	charakteristische Differenz der Massendichte des Stoffes A	kg/m <sup>3</sup>
$\eta$	dynamische Viskosität	kg/(s m)
$\lambda$	Lichtwellenlänge	m
$\nu$	kinematische Viskosität $\nu = \eta/\rho$	m <sup>2</sup> /s
$\rho$	Massendichte	kg/m <sup>3</sup>
$\hat{\rho}_A$	dimensionslose Massendichtefeld des Stoffes A, $\hat{\rho}_A = (\rho_A - \rho_{A\infty})/(\rho_{AS} - \rho_{A\infty})$	1
$\rho_A, \rho_B$	Massendichte des Stoffes A bzw. B	kg/m <sup>3</sup>
$\rho_L$	Massendichte des Tropfens	kg/m <sup>3</sup>
$\theta, \phi$	Winkel in Kugelkoordinaten gemäß Abbildung 3.6	rad
$\phi_{\text{Airy}}$	Regenbogenwinkel nach Airy-Theorie	rad
$\phi_{\text{geom}}$	Regenbogenwinkel nach geometrischer Optik	rad
$\varphi$	elektrisches Potential	V
$\varphi_0$	elektrisches Potential an der Stelle $z = z_0$ und $r = 0$	V
$\varphi_{\text{ps}}$	Pseudopotential	
$2\varphi_{\text{DC}}$	Gleichspannung zwischen Kappen- und Ringelektrode	V
$\omega$	Kreisfrequenz des elektrischen Felds	rad/s
Index S	Wert auf der Oberfläche	
Index $\infty$	Wert fern von der Tropfenoberfläche	

## Anhang B

# Bekannte Untersuchungen zur Sherwood-Zahl von Kugeln bei kleinen Reynolds-Zahlen

In diesem Anhang werden die in Abschnitt 6.2 genannten theoretischen und experimentellen Arbeiten zum Stoff- und Wärmetransport von Kugeln bzw. Tropfen im Detail vorgestellt:

**Stokes** [43] liefert eine analytische Lösung für eine Geschwindigkeitsverteilung in einer schleichenden Strömung, das heißt, Trägheitskräfte werden vernachlässigt. Dies ist nur im Grenzübergang für Reynolds-Zahlen gegen 0 exakt. Mit seinem Ausdruck für das Strömungsfeld (siehe Abbildung 6.1) lässt sich auch die stationäre konvektive Diffusionsgleichung analytisch aufschreiben.

**Kronig und Bruijsten** [5] verwendeten eine Variablentransformation und eine Reihenentwicklung um eine Näherungslösung für den lokalen Stoff- und Wärmetransport und schließlich für die mittlere Sherwood-Zahl anzugeben:

$$Sh_m = 2 + \frac{1}{2}Pe_M + \frac{581}{1920}Pe_M^2 + \dots, \quad (\text{B.1})$$

wobei  $Pe_M = Re Sc = dv_\infty/D$  die Peclet-Zahl für den Stofftransport mit der Reynolds-Zahl  $Re = dv_\infty/\nu$ , der Schmidt-Zahl  $Sc = \nu/D$ , dem Tropfendurchmesser  $d$ , der Geschwindigkeit  $v_\infty$  der ungestörten Strömung, dem Diffusionskoeffizienten  $D$  und der kinematischen Viskosität  $\nu$  ist. Diese Gleichung ist für eine Schmidt-Zahl von 0,64 in Abbildung 6.2 als gestrichelte Linie dargestellt.

Durch die Analogie der Wärmeleitgleichung und der Diffusionsgleichung

ergibt sich für den Wärmetransport die Nusselt-Zahl

$$Nu_m = 2 + \frac{1}{2}Pe_H + \frac{581}{1920}Pe_H^2 + \dots \quad (\text{B.2})$$

mit der Peclet-Zahl  $Pe_H = Re Pr = dv_\infty/a$  für den Wärmetransport mit der Prandtl-Zahl  $Pr = \nu/a$ , der Temperaturleitfähigkeit  $a = k/(c_p\rho)$ , der Wärmeleitfähigkeit  $k$ , der Wärmekapazität  $c_p$  und der Dichte  $\rho$  des Fluids.

Die gleiche konvektive Diffusionsgleichung wurde von **Acrivos und Taylor** [6] durch die Methode der „Matched Asymptotic Expansions“ gelöst. Diese Methode besteht darin, zwei verschiedene Näherungslösungen zu berechnen, die aneinander angepasst werden: eine für den Bereich nahe des Tropfens, wo der Transport durch Diffusion überwiegt und eine für den Bereich fern vom Tropfen, wo Transport durch Konvektion und Diffusion in der gleichen Größenordnung sind. Das Ergebnis

$$Sh_m = 2 + \frac{1}{2}Pe + \frac{1}{4}Pe^2 \ln Pe + 0,03404Pe^2 + \frac{1}{16}Pe^3 \ln Pe + \dots \quad (\text{B.3})$$

ist für  $Re \ll 1$  und  $Pe < 1$  eine gute Näherung und ist in Abbildung 6.2 als Strichpunktlinie dargestellt.

**Rimmer** [7] leitete ähnlich wie Acrivos und Taylor eine Formel für die Sherwood-Zahl her. Er legte jedoch das von Proudman und Pearson [32] berechnete Strömungsfeld zugrunde und erhielt folgende Gleichung, für die er als Gültigkeitsbereich  $Re < 1$  und  $Sc$  von der Ordnung 1 angibt:

$$Sh_m = 2 + 0,5Pe + f(Sc)Pe^2 + 0,25Pe^2 \ln Pe + \dots \quad (\text{B.4})$$

mit

$$f(Sc) = -\frac{1}{4} \left[ \frac{173}{160} + \ln 2 - \gamma - \frac{Sc^2}{2} + \frac{Sc}{4} - \left( 1 + \frac{3}{2}Sc - \frac{Sc^3}{2} \right) \ln \left( 1 + \frac{1}{Sc} \right) \right], \quad (\text{B.5})$$

wobei  $\gamma = 0,57722\dots$  die Euler Konstante ist. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 6.2 als durchgezogene dünne Linie dargestellt.

**Woo und Hamielec** [8] lösten die Navier-Stokes-Gleichung zusammen mit der Diffusionsgleichung numerisch für eine stationäre Strömung um eine Kugel mit  $Re$  bis zu 300. Die Gesamtdichte und der Diffusionskoeffizient wurden konstant angenommen. Ihre Ergebnisse wurden für Abbildung 6.2 (Quadrate) von einer Schmidt-Zahl  $Sc = 0,71$  gemäß Gleichung 6.18 auf  $Sc = 0,64$  umgerechnet, um sie besser mit den eigenen Ergebnissen vergleichen zu können. Die Daten von Woo und Hamielec weichen von Beard und Pruppacher [12] bis zu 4% ab.

**Kinzer und Gunn [9]** untersuchten experimentell frei fallende Wassertropfen bei  $Re > 0,2$  und einer Schmidt-Zahl  $Sc = 0,60$ . Sie bestimmten den Tropfendurchmesser aus der Tropfengeschwindigkeit. Wie in Abbildung 6.4 (Dreiecke mit Spitze links) zu sehen, zeigen ihre Resultate zwar deutlich, dass die Formel nach Ranz und Marshall für  $Re < 1$  [10, 11] nicht gilt. Die Sherwood-Zahlen streuen jedoch in diesem Bereich bis zu 20%. Diese Genauigkeit ist nicht ausreichend, um zwischen den übrigen Theorien zu unterscheiden.

Wie zum Beispiel **Frössling [46]** zeigt, ist nach der Grenzschichttheorie die Verdunstung dort auf der Tropfenoberfläche, wo die Strömung nicht abgelöst ist, proportional zu  $\sqrt{Re}$  und zu einer Funktion von  $Sc$ . Bei Reynolds-Zahlen zwischen 2 und 800 untersuchte Frössling experimentell verdunstende Wasser-, Anilin- und Nitrobenzol-Tropfen mit einem Radius zwischen 0,1 und 0,9 mm, die an einer Glasfaser oder einem Thermoelement aufgehängt sind. Er fand empirisch den Zusammenhang

$$Sh_m = 2 + K Sc^{1/3} Re^{1/2} \quad (B.6)$$

mit der Konstanten  $K = 0,552$ . Die Grenzschichttheorie ist jedoch für Reynolds-Zahlen um 1, die in dieser Arbeit untersucht werden, nicht anwendbar, weil eine Grenzschicht dort nicht mehr als dünn angesehen werden kann.

**Ranz und Marshall [10, 11]** bestimmten die Sherwood- und die Nusselt-Zahl von Tropfen als eine Funktion der Reynolds-Zahl zwischen 0 und 200. Die Schmidt-Zahl betrug etwa  $Sc = 0,61$ . Sie untersuchten Wasser, Benzen und Anilin-Tropfen mit einem Durchmesser zwischen  $490 \mu m$  und  $1,1 mm$  in Luft bei einer Temperatur zwischen  $20^\circ C$  und  $221^\circ C$ . Die Tropfen wurden an einem Thermoelement oder einer Kapillare mit einem Durchmesser von  $80 \mu m$  aufgehängt. Durch die Kapillare wurde Flüssigkeit nachgefüllt, um die Tropfengröße konstant zu halten. Ihre Daten sind in Abbildung 6.4 (+) zu sehen und in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Frössling [46]. Sie wählten jedoch  $K = 0,6$ , wodurch ihre Daten weniger als  $\pm 20\%$  von den Literaturdaten für  $Re$  bis 50000 abweichen. Ranz und Marshall zeigen jedoch keine experimentellen Daten für  $0 < Re < 0,8$ . Für  $0 < Re < 2$  und  $2,5 < Re < 5$  liegen keine Daten zum Wärmetransport vor.

**Beard und Pruppacher [12]** untersuchten Wassertropfen mit einem Durchmesser zwischen  $54 \mu m$  und  $750 \mu m$  in Luft in einem Windkanal bei einer Schmidt-Zahl von  $Sc = 0,71$ . Sie bestimmten die Sherwood-Zahl als Funktion der Reynolds-Zahl bei  $0,06 < Re < 330$ . Die Luftgeschwindigkeit wurde während der Verdunstung an die Größe des Tropfens angepasst, um ihn an seiner Position zu halten. Entsprechend ihrer Ergebnisse, die in Abbildung 6.4 als Raute auf  $Sc = 0,64$  umgerechnet dargestellt sind, schlagen

sie folgenden Zusammenhang vor (dunkle Strichpunktlinie):

$$Sh_m = 1,56 + 0,616 Sc^{1/3} Re^{1/2} \quad (B.7)$$

für  $Re > 2$  und

$$Sh_m = 2 + 0,216 (Sc^{1/3} Re^{1/2})^2 \quad (B.8)$$

für  $Re \leq 2$ . Sie erklären die um bis zu 16% höheren Sherwood-Zahlen von Ranz und Marshall durch den Einfluss der Aufhängung an der Kapillare, durch höhere Turbulenz und freie Konvektion.

Andere Autoren fanden andere Koeffizienten wie zum Beispiel **Wedding et al. [13]**:

$$Sh_m = 1,755 + 0,535 Sc^{1/3} Re^{1/2}. \quad (B.9)$$

Ihre Ergebnisse für Wassertropfen in Luft zwischen 5°C bis 20°C sind in Abbildung 6.3 für  $Sc = 0,64$  als Dreiecke mit Spitze unten dargestellt.

**Smolik et al. [14]** untersuchten Wassertropfen zwischen 0,7 und 1,4 mm Durchmesser in Luft von 0 bis 74,5% relativer Feuchte bei Temperaturen zwischen 294 bis 302 K. Die Reynolds-Zahl betrug dabei zwischen 1,2 und 64. Als Schmidt-Zahl geben sie  $Sc = 0,62$  und als Prandtl-Zahl 0,73 an. Ihre Messpunkte sind in Abbildung 6.3 als Kreise dargestellt. Der Tropfen wurde an einem Thermoelement aufgehängt, mit dem die Tropfentemperatur bestimmt wurde. Im Gegensatz dazus untersucht die vorliegende Arbeit Tropfen berührungslos und auch bei Reynolds-Zahlen unter eins.

**Zhang und Davis [30]** messen den Stofftransport von Hexadecan-Tropfen in Stickstoff in einer elektrodynamischen Falle bei  $0,07 < Re < 7$  und Raumtemperatur. Daraus ergibt sich eine Schmidt-Zahl  $Sc = 3,7$ . Sie umgehen Temperaturmessungen durch die Wahl von Hexadecan, da die Tropfen so langsam verdunsten, dass ihre Temperatur mit der Umgebungstemperatur gleichgesetzt werden kann. Sie schlagen folgende Formel mit  $n = 3$  vor, die auch in Abbildung 6.2 dargestellt ist:

$$Sh_m = 2 + \left[ (0,5Pe + 0,3026Pe^2)^{-n} + (1,008Pe^{1/3})^{-n} \right]^{-1/n} \quad (B.10)$$

Diese Gleichung ist für die in Kapitel 6 vorliegende Schmidt-Zahl  $Sc = 0,64$  in Abbildung 6.2 eingetragen (dunkle durchgezogene Linie). Da die Schmidt-Zahl von Zhang und Davis  $Sc = 3,7$  deutlich abweicht, wurden die einzelnen Messpunkte nicht eingezeichnet.

# Anhang C

## Materialeigenschaften

Eigenschaft	Berechnung	Quelle
Wärmeleitfähigkeit von Stickstoff	für Temperatur $273\text{ K} < T < 298\text{ K}$ : $k = ((T/\text{K} - 273,15)(0,0259 - 0,0240)/25 + 0,0240)\text{ W}/(\text{K m})$	[75]
Diffusionskoeffizient von Wasser in Stickstoff	$D = A(T/273,15\text{ K})^{1,81} (1 \pm 6\%),$ $A = 2,111 \cdot 10^{-5}\text{ m}^2/\text{s} \text{ gemessen durch } Sh = 2 \text{ bei } Re = 0$	[76]
spezifische Verdampfungsenthalpie von Wasser	für Temperatur $233\text{ K} < T < 313\text{ K}$ : $\Delta h = 2,501 \cdot 10^6 (273,15\text{ K}/T)^B,$ $B = 0,167 + 3,67 \cdot 10^{-4}T/\text{K}$	[53]
isobare Wärmekapazität von Stickstoff	für Temperatur $263\text{ K} < T < 313\text{ K}$ : $c_p = 1041\text{ J}/(\text{kg K})$	[48]

Eigenschaft	Berechnung	Quelle												
Dichte flüssigen Wassers	für Temperaturen $273\text{ K} < T < 283\text{ K}$ :  $\rho_{\text{L}} = 1000\text{ kg/m}^3$	[53]												
dynamische Viskosität von Stickstoff	kubische Interpolation $\eta(T)$ der Punkte <table><thead><tr><th>T/°C</th><th><math>\eta/10^{-6}\text{ Pa s}</math></th></tr></thead><tbody><tr><td>−10</td><td>16, 17</td></tr><tr><td>0</td><td>16, 65</td></tr><tr><td>10</td><td>17, 13</td></tr><tr><td>20</td><td>17, 60</td></tr><tr><td>30</td><td>18, 06</td></tr></tbody></table>	T/°C	$\eta/10^{-6}\text{ Pa s}$	−10	16, 17	0	16, 65	10	17, 13	20	17, 60	30	18, 06	[48]
T/°C	$\eta/10^{-6}\text{ Pa s}$													
−10	16, 17													
0	16, 65													
10	17, 13													
20	17, 60													
30	18, 06													
Sättigungsdampfdruck $p_{\text{sat}}$ über flüssigem Wasser	für Temperaturen $223\text{ K} < T < 373\text{ K}$ und $T_t = 273, 16\text{ K}$ :  $\log_{10} \frac{p_{\text{sat}}}{\text{hPa}} = 10,79574 (1 - T_t/T)$ $- 5,028 \log_{10}(T/T_t)$ $+ 1,50475 \cdot 10^{-4} (1 - 10^{(-8,2969 (T/T_t-1))})$ $+ 0,42873 \cdot 10^{-3} (10^{(4,76955 (1-T_t/T))} - 1)$ $+ 0,78614$	Goff-Gratch-Formel [53]												

# Literaturverzeichnis

- [1] W. Paul, H. Steinwedel, *Ein neues Massenspektrometer ohne Magnetfeld*, Z. Naturforsch. A **8** (7), S. 448-450, 1953
- [2] S. Bakic, C. Heinisch, N. Damaschke, T. Tschudi, C. Tropea, *Time integrated detection of femtosecond laser pulses scattered by small droplets*, Appl. Opt. **47** (4), S. 523-530, 2008
- [3] F. Borghese, P. Denti, R. Saija, O. I. Sindoni, *Optical properties of spheres containing a spherical eccentric inclusion*, J. Opt. Soc. Am. A **9** (8), S. 1327-1335, 1992
- [4] C. D. Richards, R. F. Richards, *Transient temperature measurement in a convectively cooled droplet*, Experiments in Fluids **25** (5-6), S. 392-400, 1998
- [5] R. Kronig, J. Bruijsten, *On the theory of the heat and mass transfer from a sphere in a flowing medium at low values of Reynolds numbers*, Appl. Sci. Res. **A2**, S. 439, 1951
- [6] A. Acrivos, T. D. Taylor, *Heat and mass transfer from single spheres in stokes flow*, Phys. Fluids **5** (4), S. 387, 1962
- [7] P. L. Rimmer, *Heat transfer from a sphere in a stream of small Reynolds number*, J. Fluid Mech. **32**, S. 1-7, 1968
- [8] S. E. Woo, A. E. Hamielec, *A Numerical Method of Determining the Rate of Evaporation of Small Water Droplets Falling at Terminal Velocity in Air*, Journal of the Atmospheric Sciences **28** (8), S. 1448-1454, 1971
- [9] C. D. Kinzer, R. Gunn, *The evaporation, temperature and thermal relaxation-time of freely falling waterdrops*, J. Meteor. **8**, 1951
- [10] W. E. Ranz, W. R. Marshall, *Evaporation from drops 1*, Chem. Eng. Prog. **48** (3), S. 141-156, 1952



- [11] W. E. Ranz, W. R. Marshall, *Evaporation from drops 2*, Chem. Eng. Prog. **48** (4), S. 173-180, 1952
- [12] K. V. Beard, H. R. Pruppacher, *A Wind Tunnel Investigation of the Rate of Evaporation of Small Water Drops Falling at Terminal Velocity in Air*, Journal of the Atmospheric sciences **28** (8), S. 1455-1464, 1971
- [13] J. B. Wedding, Y. J. Kim, R. S. Dennison, *Mass transfer from water droplets under simulated free-fall conditions*, Atmos. Environ. **20** (5), S. 1039-1045, 1986
- [14] J. Smolik, L. Dzumbova, J. Schwarz, M. Kulmala, *Evaporation of ventilated water droplet: connection between heat and mass transfer*, Aerosol Science **32** (6), S. 739-748, 2001
- [15] R. F. Wuerker, H. Shelton, R.V. Langmuir, *Electrodynamic Containment of Charged Particles*, J. Appl. Phys. **30** (3), S. 342-349, 1959
- [16] T. Leisner, *Mikro-Jets und Gewitterwolken*, Physik Journal **5** (6), S. 41-45, 2006
- [17] M. Tona, M. Kimura, *Parallel-plate ion trap useful for optical studies of microparticles*, Rev. Sci. Instrum. **75** (7), S. 2276-2279, 2004
- [18] E. James Davis, G. Schweiger, *The Airborne Microparticle*, Berlin u.a.: Springer, 2002
- [19] A. Ashkin, *Acceleration and trapping of particles by radiation pressure*, Phys. Rev. Lett. **24** (4), S. 156-159, 1970
- [20] A. Ashkin, *Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers*, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **94**, S. 4853-4860, 1997
- [21] J. Wilms, B. Weigand, *Composition measurements of binary mixture droplets by rainbow refractometry*, Appl. Opt. **46** (11), S. 2109-2118, 2007
- [22] E. G. Lierke, *Akustische Positionierung - ein umfassender Überblick über Grundlagen und Anwendungen*, ACOUSTICA - acta acoustica **82**, S. 220-237, 1996
- [23] M. Seaver, A. Galloway, T. J. Manuccia, *Acoustic levitation in a free-jet wind tunnel*, Rev. Sci. Instrum. **60** (11), S. 3452-3459, 1989

- [24] M. C. Lee, I. Feng, *Acoustic levitating apparatus for submillimeter samples*, Rev. Sci. Instrum. **53** (6), S. 854-859, 1982
- [25] E.G. Lierke, *Vergleichende Betrachtungen zur berührungslosen Positionierung von Einzeltropfen in aerodynamischen, akustischen und elektrischen Kraftfeldern*, Forsch. Ingenieurwes. **61** (7/8), S. 201-216, 1995
- [26] R. A. Millikan, *A new modification of the cloud method of determining the elementary electrical charge and the most probable value of that charge*, Phil. Mag. **19**, S. 209-228, 1910
- [27] S. E. Wood, M. B. Baker, B. D. Swanson, *Instrument for studies of homogeneous and heterogeneous ice nucleation in free-falling supercooled water droplets*, Rev. Sci. Instrum. **73** (11), S. 3988-3996, 2002
- [28] G. König, K. Anders, A. Frohn, *A new light-scattering technique to measure the diameter of periodically generated moving droplets*, J. Aerosol Sci. **17** (2), S. 157-167, 1986
- [29] A. Frohn, N. Roth, *Dynamics of Droplets*, Berlin u.a.: Springer, 2002
- [30] S. H. Zhang, E. J. Davis, *Mass transfer from a single micro-droplet to a gas flowing at low Reynolds number*, Chem. Eng. Commun. **50**, S. 51-67, 1987
- [31] C. W. Oseen, *Über die Stokes'sche Formel und über eine verwandte Aufgabe in der Hydrodynamik*, Ark. Mat. Astr. Fys. **6** (29), S. 1, 1910
- [32] I. Proudman, J. R. A. Pearson, *Expansions at small Reynolds numbers for the flow past a sphere and a circular cylinder*, J. Fluid Mech. **2** (3), S. 237-262, 1957
- [33] H. Schlichting, K. Gersten, *Boundary layer theory*, Berlin u.a.: Springer, 2000
- [34] N. Damaschke, H. Nobach, T. I. Nonn, N. Semidetnov, C. Tropea, *Multi-dimensional particle sizing techniques*, Exp. Fluids **39**, S. 336-350, 2005
- [35] C. F. Bohren, R. D. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*, New York u.a.: Wiley, 1983
- [36] G. Mie, *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*, Ann. Phys. **25**, S. 377-445, 1908

- [37] A. L. Aden, M. Kerker, *Scattering of electromagnetic waves from two concentric spheres*, J. Appl. Phys. **22**, S. 1242-1246, 1951
- [38] M. P. Ioannidou, D. P. Chrissoulidis, *Electromagnetic-wave scattering by a sphere with multiple spherical inclusions*, J. Opt. Soc. Am. A **19** (3), S. 505-512, 2002
- [39] W. J. Glantschnig, S. H. Chen, *Light scattering from water droplets in the geometrical optics approximation*, Appl. Opt. **20** (14), S. 2499-2509, 1981
- [40] H. C. van de Hulst, R. T. Wang, *Glare points*, Appl. Opt. **30** (33), S. 4755-4763, 1991
- [41] H. D. Baehr, K. Stephan, *Wärme- und Stoffübertragung*, 5. Auflage, Berlin u.a.: Springer, 2006
- [42] R. Clift, J. R. Grace, M. E. Weber, *Bubbles, Drops and Particles*, New York u.a.: Academic Press, 1978
- [43] G. G. Stokes, Camb. Phil. Trans. **9**, S. 8, 1851
- [44] H. Schlichting, K. Gersten, *Grenzschicht-Theorie*, Berlin u.a.: Springer, 2006
- [45] S. C. R. Dennis, J. D. A. Walker, J. D. Hudson, *Heat transfer from a sphere at low Reynolds numbers*, J. Fluid Mech. **60** (2), S. 273-283, 1973
- [46] N. Frössling, *Über die Verdunstung fallender Tropfen*, Gerlands Beitr. Geophys. **52**, S. 170, 1938
- [47] R. Chang, E. J. Davis, *Interfacial Conditions and Evaporation Rates of Liquid Droplets*, J. Colloid Interface Sci. **47**, S. 65, 1974
- [48] Verein Deutscher Ingenieure, *VDI-Wärmeatlas: Berechnungsblätter für den Wärmeübergang*, Düsseldorf: VDI-Verlag, 7. erw. Auflage, 1994
- [49] N. A. Fuchs, *Evaporation and droplet growth in gaseous media*, London: Pergamon Press, 1959
- [50] G. L. Hubbard, V. E. Denny and A. F. Mills, *Droplet evaporation: Effect of transients and variable properties*, Int. J. Heat Mass Transfer **18** (9), S. 1003-1008, 1975
- [51] S. N. Singh, M. M. Hasan, *Free convection about a sphere at small Grashof numbers*, Int. J. Heat Mass Transfer **26** (5), S. 781-783, 1983

- [52] R. M. Pope, E. S. Fry, *Absorption spectrum (380-700 nm) of pure water. II. Integrating cavity measurements*, Appl. Opt. **36**, S. 8710-8723, 1997
- [53] G. Fischer (ed.), *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik/ Landolt-Börnstein, Gruppe 5. Geophysik und Weltraumforschung, Bd. 4 Meteorologie, Teilbd. B. Physikalische und Chemische Eigenschaften der Luft*, Berlin u.a.: Springer, 1988
- [54] R. V. Bhalwankar, A. B. Sathe, A. K. Kamra, *The evaporation of the charged and uncharged water drops suspended in a wind tunnel*, J. Earth Syst. Sci. **113** (2), S. 129-138, 2004
- [55] B. Al Zaitone, Fachgebiet Strömungslehre und Aerodynamik, Technische Universität Darmstadt, persönliche Mitteilung vom 1.7.2008
- [56] J. Happel, H. Brenner, *Low Reynolds Number Hydrodynamics*, Englewood Cliffs: Prentice-Hall, 1965
- [57] J. Rayleigh, *On the equilibrium of liquid conducting masses charged with electricity*, Philos. Mag. **14**, S. 184-186, 1882
- [58] J. Schwarz, J. Smolik, *Mass transfer from a drop - I. Experimental study and comparison with existing correlations*, Int. J. Heat Mass Transfer **37** (14), S. 2139-2143, 1994
- [59] C. G. Downing, *The evaporation of drops of pure liquids at elevated temperatures: rates of evaporation and wet-bulb temperatures*, AIChE J. **12** (4), S. 760-766, 1966
- [60] J. P. A. J. van Beeck, M. L. Riethmuller, *Nonintrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops*, Appl. Opt. **34** (10), S. 1633-1639, 1995
- [61] D. Duft, T. Leisner, *The index of refraction of supercooled solutions determined by the analysis of optical rainbow scattering*, J. Mass Spec. **233**, S. 61-65, 2004
- [62] G. Castanet, P. Lavieille, F. Lemoine, M. Lebouche, A. Atthasit, Y. Biscos, G. Lavergne, *Energetic budget on an evaporating monodisperse droplet stream using combined optical methods Evaluation of the convective heat transfer*, Int. J. Heat Mass Transfer **45**, S. 5053-5067, 2002
- [63] H. Li, R. K. Hanson, J. B. Jeffries, *Diode laser-induced infrared fluorescence of water vapour*, Meas. Sci. Technol. **15** (7), S. 1285-1290, 2004

- [64] J. Brübach, A. Patt, A. Dreizler, *Spray thermometry using thermographic phosphors*, Appl. Phys. B **83** (4), S. 499-502, 2006
- [65] S. C. Ching, P. T. Leung, K. Young, *Spontaneous Brillouin scattering in a microdroplet*, Phys. Rev. A **41** (9), S. 5026-5038, 1990
- [66] M. Hugenschmidt, *Lasermesstechnik, Diagnostik der Kurzzeitphysik*, Berlin u.a.: Springer, 2007
- [67] R. Tuckermann, S. Bauerecker, H. K. Cammenga, *IR-Thermography of Evaporating Acoustically Levitated Drops*, Int. J. Thermophys. **26** (5), S. 1583-1594, 2005
- [68] R. Vehring, G. Schweiger, *Optical Determination of the Temperature of Transparent Microparticles*, Appl. Spectrosc. **46** (1), S. 25-27, 1992
- [69] J. F. Lübben, C. Mund, B. Schrader, R. Zellner, *Uncertainties in temperature measurements of optically levitated single aerosol particles by Raman spectroscopy*, J. Mol. Struct. **480-481**, S. 311-316, 1999
- [70] G. E. Walrafen, M. R. Fisher, M. S. Hokmabadi, W.-H. Yang, *Temperature dependence of the low- and high-frequency Raman scattering from liquid water*, J. Chem. Phys. **85** (12), S. 6970-6982, 1986
- [71] R. J. Hopkins, C. R. Howle, J. P. Reid, *Measuring temperature gradients in evaporating multicomponent alcohol/water droplets*, Phys. Chem. Chem. Phys. **8**, S. 2879-2888, 2006
- [72] M. C. Yuen, L. W. Chen, *Heat-transfer measurements of evaporating liquid droplets*, Int. J. Heat Mass Transfer **21**, S. 537-542, 1978
- [73] T. Yuge, *Experiments on Heat Transfer From Spheres Including Combined Natural and Forced Convection*, J. Heat Transfer **82**, S. 214-220, 1960
- [74] G. E. Walrafen, M. S. Hokmabadi, W.-H. Yang, *Raman isosbestic points from liquid water*, J. Chem. Phys. **85** (12), S. 6964-6969, 1986
- [75] Landolt, Börnstein, *Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik, II. Bd. Eigenschaften der Materie in ihren Aggregatzuständen, 5. Teil, Bandteil b, Transportphänomene, Kinetik, Homogene Gasgleichgewichte*, Berlin u.a.: Springer, 6. Auflage, 1968
- [76] W. J. Massman, *A review of the molecular diffusivities of H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO, O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, NO, and NO<sub>2</sub> in air, O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> near STP*, Atmos. Environ. **32** (6), S. 1111-1127, 1998

## Summary

Droplets in sprays and aerosols play an important role in the environment and industry, for example in our atmosphere, in combustion engines, in spray dryers and in pesticide management. In all of these areas, a detailed knowledge of the properties of single droplets is essential to improve our understanding and modelling of them. On the other hand, optical measurement techniques are necessary for diagnostics in sprays and bulk aerosol. To both aspects this dissertation contributes important new results.

In chapter 2 a new geometry of electrodynamic trap is shown, consisting of four electrodes in the form of tubes. This trap provides a large optical access of  $360^\circ$  in the horizontal plane and  $36^\circ$  in the vertical plane allowing a flexible combination of optical measurement techniques and the observation of light scattering over a large angular range. The new trap yields greater optical access than other existing geometries with the exception of ring electrodes. In comparison to the latter, under similar conditions, the new electrodes yield improved stability, which is necessary to enable trapping of droplets in a gas stream.

A variety of optical measurement techniques successfully combined with the new trap are presented in chapter 3. Thereby the size, refractive index, concentration and the density of droplets, and also drag forces and gas speeds are determined. Through contact free measurements any disturbance of heat and mass transfer and droplet shape by wall contacts are avoided.

The following chapters present new optical measurement techniques and new applications in the electrodynamic trap:

For the first time, the disappearance of morphology dependent resonances in water droplets of  $50\text{ }\mu\text{m}$  diameter under the illumination of femtosecond laser pulses is shown experimentally in chapter 4. This contributes to the development of a new intensity based measurement technique for sprays.

Chapter 5 shows how single water droplets of  $50\text{ }\mu\text{m}$  diameter with a spherical air inclusion are trapped for the first time. Their angular dependent light scattering is recorded for the first time to provide experimental data for the verification of existing theory. The large optical access of the new trap allowed scattered light to be collected over a range of more than  $120^\circ$ . Moreover, the time dependent light scattering is used to successfully determine the diameter of the droplet and the inclusion as well as the position of the inclusion with a precision of  $+/- 1.5\text{ }\mu\text{m}$ . Observed glare points have been found to be in good agreement with predictions.

In chapter 6 the measurement of mass transfer (Sherwood number) of spherical droplets for Reynolds numbers near one and Schmidt number 0.64 is presented. The current results build on previous works thanks to impro-

ved precision of the Sherwood number (0.015) and the large number of 700 investigated droplets. These results will help to develop models in the aforementioned applications.

Chapter 7 shows how the same measurement is combined with temperature measurements on single water droplets using spontaneous Raman scattering. Among investigations into the influence of a gas stream on the evaporation of single droplets this work is the first with a contact free temperature measurement. Within the measurement uncertainty of the temperature of  $\pm 4$  K, the results justify temperature calculations used in the previous chapter.

These experiments show the new electrodynamic trap to be a powerful tool for the investigation of single droplets. This can lead to further important innovations for industry, agriculture and environment.

## Danksagung

Herrn Prof. Dr. Theo Tschudi danke ich für die Ermöglichung und Betreuung dieser Arbeit und für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe „Licht- und Teilchenoptik“. Bei Herrn Prof. Dr. Cam Tropea bedanke ich mich für seine Betreuung und die Aufnahme in das Graduiertenkolleg GRK 1114. Herrn Prof. Dr. Ellermeier danke ich für die Übernahme des Korreferats und die Einführung in die Grundlagen der Fluidmechanik.

Ganz besonders danke ich Herrn Dr. Jürgen Petter, der mir jederzeit als Ansprechpartner zur Verfügung stand, für seine Betreuung und die Einbindung in die Gruppe der Photorefraktiven Optik, für Rat und Hilfe und für die Korrekturvorschläge zu dieser Dissertation. Für die Unterstützung bei meiner Arbeit, für die tolle Atmosphäre und die schöne gemeinsame Zeit bin ich allen Kolleginnen und Kollegen in der Arbeitsgruppe „Licht- und Teilchenoptik“ dankbar, besonders Frau Cornelia Lengler, Frau Dr. Julia Hahn, Herrn Dr. Sören Lichtenberg, Herrn Dr. Ralf Nicolaus, Herrn Dr. Markus Tiemann und Herrn Dr. Rainer Spehr.

Dank geht an die Deutsche Forschungsgemeinschaft für die Finanzierung des Projekts A1 des Graduiertenkollegs GRK 1114 „Optische Messtechniken für die Charakterisierung von Transportprozessen an Grenzflächen“. Für Unterstützung und Zusammenarbeit danke ich allen Beteiligten des Graduiertenkollegs, besonders Herrn Prof. Dr. Nils Damaschke, Herrn Sača Bakić, Herrn Prof. Dr. Wolfgang Elsässer, Herrn Dr. Feng Xu, Herrn Belal Al Zaitone, Herrn Prof. Dr. Gerhard Thiel und Frau Jenny Hewing.

Herrn Dr. Jonathan Reid danke ich für die Möglichkeit, in seiner Arbeitsgruppe an der School of Chemistry der Universität Bristol Temperaturmessungen an Wassertropfen durchzuführen. Auch Herrn Dr. Jon Wills danke ich für die Unterstützung bei Aufbau und Durchführung dieses Experiments.

Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstätten und der Elektronik-Werkstatt, besonders Herrn Wolfgang Rök, danke ich für die Anfertigung wichtiger Teile des Versuchsaufbaus. Ich danke Frau Ellen Happel, Frau Monika Medina und Frau Silke Wallner, die mich bei der Organisation bestens unterstützt haben. Herrn Dr. Franco Laeri und Herrn Atacan Erodabaşı sage ich Dank für die Bereitstellung von Hochspannungskomponenten und einer Paulfalle mit Dreiphasenwechselspannung.

Der Vereinigung von Freunden der Technischen Universität zu Darmstadt e.V. danke ich für ihre Unterstützung durch die Punga-Stiftung zum Abschluss der Promotion.

Vor allem danke ich ganz besonders meinen Eltern Günther und Erika Heinisch für alles, was sie für mich getan haben. Sie haben mich nicht nur bis zu meinem Studienabschluss stets gefördert und unterstützt, sondern haben mich auch während der Arbeit an der Dissertation bestärkt, begleitet und ermutigt.



## Lebenslauf

Name: Christian Heinisch  
Geburtsdatum: 02.03.1979  
Geburtsort: Fulda  
Familienstand: ledig

### Schul Ausbildung

1985-1989 Grundschule Eichenzell  
1989-1998 Rabanus-Maurus-Schule (Domgymnasium) Fulda  
7/1998 Abitur

### Wehrdienst

7/1998-4/1999 Grundwehrdienst

### Studium

4/1999 Beginn des Studiums zum Diplom-Physiker an der Technischen Universität Darmstadt  
9/2002-8/2003 Auslandsaufenthalt an der Ecole Polytechnique Federale de Lausanne (EPFL), Schweiz  
6/2004-5/2005 Diplomarbeit „Synthese abstimmbarer optischer Filter durch Modulation volumenholographischer Bragg-Gitter“ in der Arbeitsgruppe Licht- und Teilchenoptik  
5/2005 Diplom mit Auszeichnung

### Promotion

6/2005-11/2008 Promotion unter Anleitung von Prof. Dr. Theo Tschudi im Fachbereich Physik der Technischen Universität Darmstadt im Rahmen des Graduiertenkollegs 1114 „Optische Messtechniken für die Charakterisierung von Transportprozessen an Grenzflächen“  
1/2008-3/2008 Forschungsaufenthalt an der School of Chemistry, University of Bristol, UK